

T H E S E

PRESENTEE

A L'UNIVERSITE DE NANCY 1

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

par

Lucien GLOWINSKI

**CONTRIBUTION A L'ETUDE DE LA FORMATION DES CAVITES
CREEES PAR IRRADIATION, DANS LES METAUX**

Soutenue le 2 juillet 1974, devant la Commission d'Examen

MM. G. CHAMPIER

Président

M. GERL

B. BAUDELET

J.P. POIRIER

Y. ADDA

Examineurs



REMERCIEMENTS

Ce travail a été effectué dans les laboratoires de la Section de Recherches de Métallurgie Physique au Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay.

Je suis reconnaissant à Monsieur le Professeur Champier de s'y être intéressé et d'avoir bien voulu présider le jury de ma thèse.

Les Professeurs B. Baudalet et M. Gerl ainsi que J.P. Poirier ont accepté d'examiner ce travail et de faire partie de mon jury : je leur en sais grè.

Je tiens à remercier le Docteur Y. Adda pour m'avoir accueilli dans son laboratoire et pour m'avoir suivi et guidé tout au long de ce travail.

Je remercie également G. Charry et H. Poder qui ont eu la charge d'effectuer les irradiations aux ions et A. Marraud et A. Jouniau pour l'aide qu'ils nous ont apportée dans l'utilisation du microscope de 1 Mev.

Ma gratitude va aux personnes qui, d'une manière ou d'une autre, ont permis l'aboutissement de cette étude; je pense en particulier à C. Fiche, V. Lévy et A. Risbet.

Enfin j'adresse mes plus vifs remerciements à Madame Bureau qui a eu la lourde charge de dactylographier cette thèse.



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41551912_0046

TABLE DES MATIÈRES

INTRODUCTION

CHAPITRE I : APPROCHE THÉORIQUE DES PHÉNOMÈNES

- 1 - CREATION DE DEFAUTS ET CALCUL DU NOMBRE D'ATOMES DEPLACES
- 2 - ELIMINATION DES DEFAUTS CREES PAR L'IRRADIATION

CHAPITRE II : ÉTUDES EXPÉRIMENTALES

- 1 - LES IRRADIATIONS
- 2 - RESULTATS EXPERIMENTAUX

CHAPITRE III : MÉTHODES EXPÉRIMENTALES

- 1 - MATERIAU
- 2 - PREPARATION DES LAMES MINCES
- 3 - IRRADIATION AUX IONS ET IMPLANTATIONS
- 4 - OBSERVATION ET MESURE DU GONFLEMENT
- 5 - MESURE DE LA DENSITE DE LIGNES DE DISLOCATION
- 6 - ANALYSE CRYSTALLOGRAPHIQUE DES BOUCLES DE DISLOCATIONS
- 7 - IRRADIATIONS AUX ELECTRONS

CHAPITRE IV : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX DES IRRADIATIONS AUX IONS

- 1 - OBSERVATIONS GENERALES
- 2 - EFFET DES PARAMETRES DE L'IRRADIATION SUR LE GONFLEMENT
- 3 - EFFET D'UN RECUIT SOUS VIDE AVANT IRRADIATION
- 4 - EFFET D'UNE PREINJECTION DE GAZ
- 5 - EFFET DE LA DOSE D'IRRADIATION

CHAPITRE V : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX DES IRRADIATIONS AUX ÉLECTRONS

- 1 - CUIVRE BRUT

- 2 - CUIVRE CHARGE EN HELIUM
- 3 - CUIVRE DEGAZE PAR RECUIT
- 4 - INFLUENCE DES PARAMETRES DE L'IRRADIATION

CHAPITRE VI : DISCUSSION

- 1 - ANALYSE PHENOMENOLOGIQUE DES DOMMAGES D'IRRADIATION
- 2 - MECANISME DE GERMINATION DES CAVITES

CONCLUSION

RÉFÉRENCES

ANNEXES

FIGURES

INTRODUCTION

Le résultat de l'irradiation d'un métal par des neutrons, des ions ou des électrons est une production en nombre égal de lacunes et d'interstitiels. Ces défauts hors d'équilibre vont s'éliminer par plusieurs processus : recombinaison directe, élimination sur des puits fixes (dislocations, joints de grains, surfaces libres etc.....), agglomération des défauts de même espèce. Les interstitiels en s'agglomérant forment des amas bidimensionnels : les boucles de dislocations. Les lacunes peuvent également s'agglomérer pour former des boucles de dislocations, mais, sous certaines conditions elles s'agglomèrent sous forme d'amas tridimensionnels : les cavités. Dans le premier cas l'augmentation de volume due à la précipitation des interstitiels est compensée par la diminution de volume due à la précipitation des lacunes. Dans le second cas, cette compensation n'a pas lieu, et l'on observe une augmentation de volume du matériau.

Or, il se trouve que dans les réacteurs à neutrons rapides, les conditions de flux et de température sont telles que la précipitation des lacunes sous forme de cavités se trouve être favorisée. La présence de cavités a pour la première fois été mise en évidence par Cawthorne et Fulton [1] dans les matériaux de structure des réacteurs rapides et fût rapidement suivie par leur détection dans de nombreux métaux et alliages. Ce phénomène constitue un problème important pour le développement des réacteurs rapides et a donné lieu à de nombreuses études théoriques et expérimentales.

Toutes les études entreprises sur le gonflement des métaux sous irradiation ont pour but de prévoir quel sera l'augmentation de volume des gaines au bout du temps de vie des réacteurs rapides. Les expériences d'irradiation en piles sont longues et relativement coûteuses. De plus, elles sont réalisées pour des doses et des flux instantanés inférieurs à ceux que devront subir les matériaux des futurs réacteurs. De nombreux expérimentateurs ont donc fait porter leurs efforts sur des méthodes de simulation (irradiation aux ions ou aux électrons). Celles-ci présentent l'avantage d'être moins coûteuses et de donner lieu au bout de quelques heures d'irradiation à des gonflements qui demanderaient quelques mois, voire quelques années d'irradiation en pile. Le problème qui se pose est donc de pouvoir relier ces différentes irradiations entre elles. Pour ce faire il faut connaître l'influence sur le

gonflement de paramètres tels que la dose d'irradiation et le flux instantané, ainsi que le rôle joué par les cascades de déplacements et les gaz produits par réactions nucléaires sur la germination des cavités. La connaissance de ces différents effets est également indispensable si l'on veut pouvoir élaborer des programmes théoriques capables de prévoir, pour des conditions d'irradiation données, l'augmentation de volume d'un métal.

Ce travail avait donc deux objectifs principaux :

- Obtenir les lois phénoménologiques régissant la germination et la croissance des cavités afin de vérifier la validité des modèles existants.
- Essayer de préciser les mécanismes de germination des amas de défauts.

La complexité même du problème nous imposait certaines contraintes:

- Il était important de pouvoir expérimenter dans des conditions facilement contrôlables et de pouvoir étudier l'influence de chaque paramètre séparément. Ceci n'est pas possible avec des irradiations aux neutrons. Nous avons donc fait des irradiations aux ions et aux électrons.

- Les paramètres physiques du métal tels que les énergies de formation et de migration des défauts et l'énergie de surface, étant des données indispensables pour les calculs théoriques il nous fallait choisir un métal pour lequel ils sont bien connus. Nous étions donc limité au choix d'un métal pur. Nous avons choisi le cuivre car c'est le métal dont les propriétés physiques sont certainement les mieux connues et pour lequel des expériences d'irradiation aux neutrons avaient été réalisées dans ce laboratoire.

Nous nous sommes donc intéressés à la formation des cavités dans le cuivre irradié aux ions cuivre de 500 Kev et aux électrons de 1 Mev.

Nous commencerons par donner une brève revue des principales études théoriques (Chapitre I) et expérimentales (Chapitre II) réalisées antérieurement. Après avoir décrit les méthodes expérimentales utilisées (Chapitre III) nous exposerons nos propres résultats expérimentaux des irradiations aux ions cuivre (Chapitre IV) et aux électrons de 1 Mev (Chapitre V). Puis nous ferons l'analyse de ces résultats (Chapitre VI) et les comparerons aux prévisions des modèles théoriques de croissance et de germination homogène ainsi qu'aux prévisions du modèle de simulation à l'ordinateur par la méthode de Monte-Carlo.

CHAPITRE I

APPROCHE THEORIQUE DES PHENOMENES

1 - CREATION DES DEFAUTS ET CALCUL DU NOMBRE D'ATOMES DEPLACES

La formation de défauts au cours d'une irradiation dépendant essentiellement du nombre d'atomes déplacés, il est nécessaire de connaître dans chaque cas le taux de déplacement pour pouvoir relier les différentes irradiations entre elles.

Les particules chargées se ralentissent dans la matière par interaction inélastique avec les électrons et par interaction élastique avec les ions du métal. Si l'énergie transmise à un atome par choc élastique est supérieure à un certain seuil de déplacement E_d , cet atome sera éjecté de son site d'équilibre. Ce premier atome frappé, appelé primaire, pourra à son tour transmettre par collision une énergie supérieure à E_d à un autre atome dans son voisinage. Cet atome sera déplacé et pourra provoquer d'autres collisions et d'autres déplacements. Il se crée ainsi une cascade de déplacements atomiques dans la région du primaire. Ceci est vrai pour des irradiations aux ions et aux neutrons. Dans le cas des irradiations aux électrons, il ne se forme généralement pas de cascade. Les problèmes de création de défauts sont donc différents et nous les exposerons séparément.

1.1 - Neutrons et ions

Il existe plusieurs méthodes de calcul du nombre d'atomes déplacés par un primaire d'énergie E .

1.1.1 - Les modèles analytiques

a) Le modèle de Kinchin et Pease (26)

Au prix de certaines hypothèses, ce modèle permet de traiter le problème de façon analytique.

On suppose :

- un solide amorphe : les effets dûs au réseau sont ainsi négligés
- des collisions atomiques à deux corps dans le modèle des sphères dures
- l'existence d'une énergie de seuil de déplacement E_d telle que si l'énergie E de la particule est inférieure à E_d aucun atome ne sera déplacé
- l'existence d'un seuil d'ionisation E_c au dessus duquel toute perte d'énergie est inélastique et au dessous duquel il n'y a que des collisions élastiques.

Le nombre d'atomes déplacés par un primaire d'énergie E est donc donné par :

$$\begin{aligned}
 N_d &= 0 & \text{si } E < E_d \\
 N_d &= 1 & \text{si } E_d < E < 2 E_d \\
 N_d &= \frac{E}{2 E_d} & \text{si } 2 E_d < E < E_c \\
 \text{et } N_d &= \frac{E_c}{2 E_d} & \text{si } E > E_c
 \end{aligned}$$

b) Le modèle " Half - Nelson " (27)

Ce modèle est une modification semi-empirique du modèle de Kinchin et Pease tenant compte des effets dûs au réseau (focalisation, canalisation) et utilisant des sections efficaces plus réalistes que celles des sphères dures. On a :

$$N_d = \alpha \frac{\beta(E) W(E)}{\gamma(E) E_f} E$$

- α est un facteur modifiant l'approximation des sphères dures
- $\beta(E)$ a pour but de tenir compte des recombinaisons immédiates dans la cascade; mais il est généralement pris égal à 1
- $W(E)$ est la fraction de l'énergie E qui est cédée au réseau dans les collisions élastiques
- E_f est l'énergie de focalisation
- $\gamma(E)$ correspond au facteur 2 de Kinchin et Pease; il est supposé augmenter avec E.

1.2 - Les modèles de simulation à l'ordinateur

Dans ces modèles, on construit un cristallite contenant un certain nombre d'atomes qui interagissent entre eux suivant un potentiel d'interaction donné. La cascade est initiée à partir d'un atome primaire auquel on a donné une impulsion dans une certaine direction.

a) La simulation par les techniques de dynamiques moléculaires
 Dans ce modèle les collisions entre atomes sont traitées comme un problème à n corps. A cause du temps de calcul nécessaire, la taille du cristallite est assez faible et l'énergie de l'atome primaire ne doit pas dépasser 1 Kev l'avantage de cette méthode est qu'elle ne nécessite pas la spécification

de paramètre tel que le seuil de déplacement et le rayon de recombinaison. Elle permet donc d'obtenir des informations sur ces paramètres.

b) La simulation des cascades par collisions à deux corps.

Elle permet de traiter des cascades dans un domaine d'énergie allant jusqu'à

1 Mev . On suppose une énergie de seuil de déplacement unique E_d ; mais l'on peut tenir compte des effets de vibration thermique et des pertes d'énergie inélastique dans la cascade.

Torrens et Robinson (38) ont trouvé que le nombre de paires de Frenkel créées dans une cascade est représenté pour la plupart des métaux par l'équation :

$$N_d = K \frac{(E - E_{\text{inélastique}})}{2 E_d} = K \frac{E_{\text{dommage}}}{2 E_d}$$

où $E_{\text{inélastique}}$ est la perte totale d'énergie due aux collisions inélastiques et K un coefficient d'efficacité de déplacement dont la valeur est environ 0,8.

Norgett (28) a montré l'équivalence des calculs de collisions à deux corps et des calculs de dynamique moléculaire si l'on prend pour E_d l'énergie moyenne nécessaire pour produire une paire stable. En l'absence d'une connaissance satisfaisante de la valeur de E_d Norgett, Robinson et Torrens (25) proposent de prendre $E_d = 40$ ev pour tous les métaux. L'expression de N_d prend alors la forme simple :

$$N_d = 10 E_{\text{dommage}}$$

où E_{dommage} est exprimé en Kev.

C'est cette dernière expression que nous avons adopté. Ainsi, pour du cuivre irradié au ions cuivre, si le parcours moyen de l'ion est $\bar{R}$ et le courant d'ions J (A/cm^2), la production moyenne de défauts $\bar{S}$ est :

$$\bar{S} = \frac{J N_d}{N e \bar{R}} \quad \text{d.p.a./s}$$

avec e = charge élémentaire de l'ion et N = nombre d'atomes par unité de volume du matériau cible. Le déplacement par atome et par seconde (d.p.a./s) est défini comme étant le nombre de fois qu'un atome du métal est déplacé de son site pendant l'unité de temps.

La théorie de Lindhard (39) permet le calcul de $\bar{R}$ et E_{dommage} . On a :

$$\bar{E}_{\text{dommage}} = 250 \text{ Kev}$$

$$\bar{R} = 0,14 \mu\text{m pour des ions de } 500 \text{ Kev}$$

Avec $N = 0,846 \times 10^{23} \text{ at. cm}^{-3}$ on obtient :

$$\bar{S} = 1,9 \times 10^4 \text{ J}$$

1.3 - Electrons

a) Energie cédée à un atome de masse atomique M par un électron d'énergie E .

Pour des électrons ayant une énergie suffisante pour déplacer des atomes on doit utiliser la mécanique quantique relativiste. En théorie relativiste le moment et l'énergie cinétique d'un électron dont la masse au repos est m_0 et la vitesse v sont données par les expressions :

$$P = m v \quad \text{et} \quad E = (m - m_0) c^2$$

$$\text{où} \quad m = \frac{m_0}{1 - \beta^2} \quad \text{avec} \quad \beta = \frac{v}{c}$$

c étant la vitesse de la lumière.

La masse de l'électron étant très petite devant celle de l'atome frappé on peut considéré que la vitesse de l'électron avant et après le choc est la même.

Le moment transféré au cours de la collision est :

$$\Delta P = 2 m v \frac{\Theta}{2}$$

où Θ est l'angle de déflexion.

L'énergie transmise correspondante est :

$$\Delta E = \frac{(\Delta P)^2}{2 M} = 2 m^2 v^2 \sin^2 \frac{\Theta}{2} / M$$

En utilisant les relations précédentes on trouve :

$$\Delta E = \frac{2 E (E + 2 m_0 c^2)}{M c^2} \sin^2 \frac{\Theta}{2}$$

et l'énergie de transfert maximum :

$$E_m = \frac{2 E (E + 2 m_0 c^2)}{M c^2}$$

b) Calcul du nombre de déplacements par atome par seconde.

Le nombre total d'atomes déplacés par seconde est donné par la formule :

$$S = \frac{I}{e} \sigma_d N_d$$

où I est le courant d'électron arrivant sur la cible

e est la charge de l'électron

σ_d est la section efficace de déplacement

N_d : le nombre total d'atomes déplacés par un primaire d'énergie E_m est :

$$N_d = 1 + \ln \left(\frac{E_m}{2 E_d} \right)$$

Tous les primaires n'ayant pas l'énergie maximum une approximation suggérée par Kinchin et Pease est de prendre :

$$N_d = 1 + \frac{1}{2} \ln \left(\frac{E_m}{2 E_d} \right)$$

Une solution approchée, mais satisfaisante du calcul de la section efficace de déplacement a été donnée par Mc Kinley et Feshbach [29] sous la forme suivante :

$$\sigma_d = 2,48 \times 10^{-25} Z^2 \left(\frac{1 - \beta^2}{\beta^4} \right) \frac{E_m}{E_d} \left\{ 1 + 2M\alpha\beta \left(\frac{E_d}{E_m} \right)^{1/2} - \frac{E_d}{E_m} \left[1 + 2M\alpha\beta + (\beta^2 + M\alpha\beta) \ln \left(\frac{E_m}{E_d} \right) \right] \right\}$$

où Z est le nombre atomique du matériau cible et $\alpha = \frac{Z}{137}$. Les autres quantités ont déjà été définies.

c) Cas du cuivre

L'énergie maximum transmise par un électron de 1 Mev à un atome de cuivre est de 68 ev. Le taux de déplacement dépend de l'énergie de seuil de déplacement utilisée. Le tableau n°1 donne le nombre de déplacements par atome par seconde produit par un faisceau d'électrons de 1 A/cm² pour deux énergies de seuil de déplacement :

- $E_d = 19$ ev étant la valeur que l'on trouve expérimentalement. Il suffit en effet, d'un faisceau d'électrons de 400 Kev pour créer des défauts dans le cuivre [65].

- $E_d = 40$ ev étant la valeur adoptée pour le calcul du nombre d'atomes déplacés au cours d'un bombardement ionique ou neutronique.

TABLEAU I

I (A/cm ²)	E _d (ev)	σ_d (barns)	$\sigma_d N_d$ (barns)	S d.p.a / s
1	19	56	70	$4,35 \times 10^{-4}$
	40	9,5	9,5	6×10^{-5}

2 - ÉLIMINATION DE DÉFAUTS CRÉÉS PAR L'IRRADIATION

Les défauts créés par l'irradiation s'ajoutent à ceux en équilibre thermique. Si la température est assez élevée, ces défauts peuvent migrer et vont s'éliminer par plusieurs processus.

- Recombinaison mutuelle quand un interstitiel rencontre une lacune.
- Elimination sur des puits quand un défaut ponctuel rencontre, par exemple, une surface, un joint de grains ou une dislocation.

- Enfin, les défauts de même espèce peuvent s'agglomérer pour former des amas. Les interstitiels s'agglomèrent toujours pour former des boucles de dislocation. Les amas lacunaires peuvent être bidimensionnels (boucle de dislocation) ou tridimensionnels (cavités).

De nombreuses études théoriques ont été entreprises pour essayer de prévoir quelle sera, pour des conditions d'irradiation données la densité de cavités produites et leur taux de croissance en fonction du temps.

2.1 - La germination des cavités

Il existe plusieurs théories basées sur deux hypothèses différentes : germination homogène et germination hétérogène.

La théorie de germination homogène considère que la formation d'un germe stable résulte de la rencontre au hasard des défauts de même type. La force motrice du processus est donc la sursaturation.

Pour la germination hétérogène différents mécanismes ont été proposés : germination sur des microbulles de gaz ou sur des sites préexistants tels que les précipités; ou encore des processus faisant intervenir les cascades de déplacement. Des cavités sont produites par bombardement électronique dans des échantillons ne contenant pas au préalable d'amas de lacunes (15). Ceci élimine donc la germination sur les cascades de déplacement comme seul mécanisme possible. La germination sur des sites préexistants a par contre été mise en évidence (14, 30). Mais ce mécanisme ne semble être possible que dans les matériaux impurs et les alliages.

La première hypothèse formulée par Cawthorne et Fulton était que la germination avait lieu sur des microbulles de gaz se formant en cours d'irradiation. On distinguerait donc deux stades : d'abord formation de microbulles, puis précipitation des lacunes sur ces microbulles. Une autre hypothèse formulée par Adda (31) inverse le processus : le premier stade étant la formation d'amas de lacunes dont la stabilité dépendrait de la possibilité pour des atomes de gaz de les atteindre par diffusion avant qu'ils ne s'effondrent pour former des boucles de dislocation. Une troisième possibilité est évidemment l'agglomération simultanée de lacunes et d'atomes de gaz.

Le problème est extrêmement difficile à traiter théoriquement, et l'évolution des modèles reflète cette difficulté. Les premiers modèles utilisaient des lois empiriques basées sur des résultats expérimentaux (32) ou des lois semi-empiriques basées sur la théorie classique de germination homogène. La théorie classique étant applicable aux cavités uniquement dans le cas où les lacunes sont la seule espèce mobile, elle a été modifiée par la suite pour tenir compte de la présence des interstitiels. Enfin, récemment, des modèles tenant compte à la fois des lacunes, des interstitiels et des impuretés gazeuses ont commencé à voir le jour. [41]

Toutes ces théories ont en commun certaines hypothèses :

- La concentration en défauts ponctuels est supposée uniforme. C'est-à-dire que l'on ne tient pas compte des cascades.
- Les seules espèces mobiles sont les défauts simples.
- Les défauts obéissent aux lois des solutions diluées.
- L'état stationnaire pour les concentrations en défauts est atteint.
- La vitesse de germination est lente par rapport à la vitesse de mise en équilibre. C'est-à-dire que les concentrations en défauts ne varient pas au cours du temps.

a) Germination des cavités en présence de lacunes seules.

La théorie classique est le plus souvent associée aux noms de Volmer et Weber (33) et s'applique au cas le plus simple : changement d'état sans changement de composition.

La variation d'énergie libre du système, par unité de volume, due à la formation d'un amas de n lacunes à partir de n lacunes isolées est donnée par la formule :

$$\Delta F = \frac{4}{3} \pi r^3 \Delta F_v + 4 \pi r^2 \gamma$$

où r est le rayon de l'amas

γ l'énergie de surface du métal

ΔF_v étant la différence, par unité de volume, entre le potentiel chimique des lacunes en sursaturation et celui des lacunes à l'équilibre thermodynamique.

La variation de ΔF en fonction de r présente un maximum dont les coordonnées sont :

$$R_c = \frac{2 \gamma}{\Delta F_v} \quad \text{et} \quad \Delta F_c = \frac{16 \pi \gamma^3}{3 (\Delta F_v)^2}$$

R_c est le rayon critique de l'amas. En dessous de ce rayon l'amas est instable et a tendance à se redissoudre, au dessus de ce rayon il est stable.

Pour les cavités on obtient donc :

$$R_c = \frac{2 \gamma \Omega}{kT \text{ Log } \frac{C_\ell}{C_\ell^0}}$$

où Ω est le volume atomique

C_ℓ la concentration lacunaire sous irradiation

C_ℓ^0 la concentration lacunaire à l'équilibre thermodynamique.

Le taux de germination est défini comme étant le nombre d'amas qui passent la taille critique par unité de volume et par seconde. On suppose qu'un amas ne peut croître ou décroître qu'en gagnant ou perdant une lacune à la fois. On trouve que le taux de germination est le produit du nombre d'amas ayant la taille critique (N_c) par la fréquence avec laquelle ces amas acquièrent une lacune supplémentaire (β_c)

$$I = \beta_c N_c Z$$

Z est le facteur de Zeldovitch. Il est en général compris entre 0,01 et 0,1 et ne constitue qu'un facteur correctif. Il représente la proportion d'amas de taille surcritique qui se décomposent.

Harkness et Li (34) ont adopté ce formalisme en prenant le facteur de Zeldovitch égal à 1. Ils représentent empiriquement la densité d'amas ayant la taille critique par la relation :

$$N_c = k_1 \exp \left(- \frac{\Delta F_c}{kT} \right)$$

k_1 est un paramètre qui est pris égal à $\frac{\Phi}{4}$ où Φ est le flux de neutrons.

Harkness et Li pensent que β_c doit être proportionnel à la différence entre les flux de lacunes et d'interstitiels arrivant sur l'amas de

taille critique et écrivent :

$$\beta_c = (J_v - J_i) r_c$$

où $J_v = 4 \pi r_c D_l C_l$ et $J_i = 4 \pi r_c D_i C_i$ sont respectivement les flux de lacunes et d'interstitiels arrivant à l'amas de taille critique.

b) Germination des cavités en présence de lacunes et d'interstitiels en sursaturation.

Russel (35) a généralisé la théorie classique pour tenir compte de la présence d'interstitiels. L'enthalpie libre de formation des amas de taille critique ne peut être définie puisque le système n'est pas en équilibre. Russel est donc conduit à définir de nouvelles fonctions dont les expressions mathématiques et les dimensions sont les mêmes que celles obtenues par la théorie classique mais desquelles on ne peut donner aucune définition thermodynamique. Elles s'expriment par rapport à leurs homologues du système sans interstitiel.

Les expressions obtenues pour le rayon critique et le taux de germination prennent donc la même forme mathématique que celles obtenues par la théorie classique :

$$r'_c = \frac{2 \gamma \Omega}{kT \text{ Log } \left(\frac{D_l C_l - D_i C_i}{D_l C_l^0} \right)}$$

et $I = \beta_c N'_c Z'$

Si l'expression de r'_c est simple et l'on voit tout de suite que $r'_c > r_c$, l'expression obtenue par Russel pour la barrière d'énergie pour la germination doit être évaluée par une méthode numérique.

On a également : $\Delta F'_c > \Delta F_c$

Afin d'obtenir une expression purement analytique du taux de germination, Burton (36) a adopté une approche mathématique légèrement différente de celle de Russel, mais il arrive aux mêmes conclusions.

Katz et Wiedersich (37) ont utilisé la même approche que Burton et Russel et leur dérivation de la relation donnant le taux de germination est

sensiblement la même.

Le taux de germination est donné par la relation :

$$I = \beta_v / \int_1^{\infty} [S(x) n(x)]^{-1} dx$$

où β_v est le taux d'arrivée des lacunes sur les amas

$S(x)$ est la surface de l'amas contenant x lacunes
et $n(x)$ le nombre d'amas de taille x .

c) Germination des cavités en présence de lacunes, d'interstitiels et d'atomes de gaz.

Le principe du calcul est le même que précédemment. Katz, Wiedersich et Burton [41] trouvent que la présence d'un gaz mobile dans la matrice augmente sensiblement le taux de germination.

d) Modèles empiriques.

Brébec et Gomolinski [32] prennent une loi de la forme :

$$I = \alpha t^n \exp [- \beta T / T_F]$$

T est la température de l'irradiation et T_F la température de fusion. Les paramètres α , n et β sont ajustés à partir des valeurs expérimentales du nombre de cavités en fonction du temps et de la température.

Bullough et Perrin [42] supposent que la germination a lieu sur des microbulles de gaz qui se forment au début de l'irradiation.

2.2 - LA CROISSANCE DES CAVITES

La croissance ne peut avoir lieu que si le flux d'interstitiels arrivant sur la cavité est inférieur au flux de lacunes. Il faut donc que les interstitiels créés par l'irradiation s'éliminent en plus grand nombre que les lacunes. On attribue généralement aux dislocations le rôle de puits préférentiel pour les interstitiels. Ce sont donc les dislocations qui créent dans le matériau les conditions nécessaires à la croissance.

Tous les modèles reposent sur un principe analogue : on cherche

à résoudre l'équation de conservation :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = - \operatorname{div} J + \sigma$$

Le premier terme du deuxième membre de cette équation traduit le fait que la variation de concentration dans un élément de volume provient de la différence entre le flux de défauts qui pénètre dans le volume et le flux qui en sort, ce terme est contrôlé par la diffusion. Le deuxième terme représente le bilan entre la production et l'élimination des défauts dans le volume considéré. Pour expliciter ce dernier terme on utilise en général la théorie de la cinétique chimique.

On suppose un taux de production de défauts G constant et une distribution homogène de monolacunes et de monointersticiels. On suppose en outre qu'il y a à chaque instant équilibre entre la production et l'élimination des défauts. Soit :

$$\frac{d C_l}{d t} = \frac{d C_i}{d t} = 0$$

Les équations de bilan pour les lacunes et les interstitiels pour le cas où les seuls puits sont les cavités et les dislocations s'écrivent :

$$\begin{aligned} \frac{d C_l}{d t} &= G - Q_{l,c} - Q_{l,d} - \alpha_R C_l C_i = 0 \\ \frac{d C_i}{d t} &= G - Q_{i,c} - Q_{i,d} - \alpha_R C_l C_i = 0 \end{aligned}$$

- C_l et C_i sont respectivement les concentrations en lacunes et en interstitiels
- $Q_{l,d}$ et $Q_{i,d}$ sont les taux d'élimination des lacunes et des interstitiels sur les dislocations

Ce problème a été traité par Ham (43) et Harkness et Li (34) en ont donné les solutions suivantes :

$$Q_{l,d} = \frac{2 \pi D_l (C_l - C_l^0) \rho d}{\operatorname{Log} \frac{r_d}{r_{cl}}}$$

$$Q_{i,d} = \frac{2 \pi D_i C_i \rho d}{\text{Log} \frac{r_d}{r_{ci}}}$$

où D_ℓ et D_i sont les coefficient de diffusion des lacunes et des interstitiels

C_ℓ^0 la concentration de lacunes à l'équilibre thermique

ρd est la densité de dislocations

r_d la demi-distance entre dislocations

$r_{c\ell}$ et r_{ci} les rayons de capture autour de la dislocation pour les lacunes et les interstitiels.

Certains auteurs prennent $r_{c\ell} = r_{ci}$ mais multiplient $Q_{i,d}$ par un facteur $\alpha > 1$ afin de tenir compte de l'attraction préférentielle des dislocations pour les interstitiels. La valeur de α est comprise entre 1,01 et 1,02.

α_R est le coefficient de recombinaison. Il s'exprime simplement à partir des fréquences de saut des lacunes et des interstitiels par :

$$\alpha_R = z (\nu_{S\ell} + \nu_{Si})$$

z étant le nombre de sites du réseau autour d'un défaut à partir desquels la recombinaison est spontanée.

$Q_{\ell,c}$ et $Q_{i,c}$ sont les taux d'annihilation des lacunes et des interstitiels sur les cavités. Ce problème a été traité de deux manières différentes.

a) Harkness et Li (34) ainsi que Gomolinski et Brébec (32) emploient une méthode quasi-chimique et supposent que la cavité est un puits parfait. Ils obtiennent les expressions suivantes :

$$Q_{\ell,c} = 4 \pi D_\ell R \left[C_\ell - C_\ell^0 \exp \frac{F_m \Omega}{kT} \right]$$

R est le rayon de la cavité

Ω est le volume atomique et F_m la force tendant à faire disparaître la cavité.

La force F_m est :

$$F_m = \frac{2 \gamma}{R} - p - \sigma$$

où p est la pression à l'intérieur de la cavité et σ la pression moyenne dans la matrice au voisinage de la cavité.

On a d'autre part :

$$Q_{i,c} = 4 \pi D_i R C_i$$

Ces auteurs obtiennent pour la vitesse de croissance d'une cavité l'expression :

$$\frac{dR}{dt} = \frac{1}{R} [D_{\ell} C_{\ell} - D_i C_i - D_{\ell} C_{\ell}^0 \exp \left(\frac{F_m \Omega}{k T} \right)]$$

b) Bullough et Perrin (39) quant à eux utilisent une méthode cellulaire . Ils se placent au voisinage de la cavité et considèrent la façon dont les défauts entrent dans la cavité. Ils obtiennent la condition aux limites :

$$\frac{dR}{dt} = \frac{1}{b} [D_{\ell} C'_{\ell} - D_i C'_i - D_{\ell} C_{\ell}^0 \exp \left(\frac{F_m \Omega}{k T} \right)]$$

C'_{ℓ} et C'_i sont les concentrations en lacunes et en interstitiels à l'interface cavité-matrice; b est une largeur de l'ordre d'une distance interatomique.

La solution des équations de bilan, soumise à cette condition aux limites, donne pour la vitesse de croissance la même expression que celle obtenue par Harkness et Li.

Ces trois modèles de croissance associés aux lois de germination que nous avons précédemment décrites ont permis à leurs auteurs de reproduire théoriquement, certains résultats expérimentaux.

CHAPITRE II

ETUDES EXPERIMENTALES

1 - LES IRRADIATIONS

Le nombre de travaux effectués à ce jour sur le problème de la formation des cavités dans les métaux est très important. Il n'est donc pas question d'en donner ici une revue complète. Nous nous contenterons de rappeler les principales études et de dégager les avantages et les inconvénients de chaque mode d'irradiation. Une revue assez complète a été donnée par Norris (5) et les publications les plus importantes sur le sujet sont contenues dans deux excellents compte-rendus de colloque (3, 4). La liste des principales études sur le gonflement est donnée dans l'annexe n° I.

1.1 - Irradiations aux neutrons

Les expériences aux neutrons sont les plus nombreuses mais également les plus difficiles à interpréter. Ce sont évidemment les irradiations qui se rapprochent le plus des conditions qui seront celles des futurs réacteurs rapides. Mais, ces expériences sont longues et relativement coûteuses. De plus leur durée est encore loin du temps de vie d'un réacteur. Les résultats obtenus doivent donc être extrapolés aussi bien en ce qui concerne les effets de la dose totale que du flux instantané. Le flux instantané que l'on espère obtenir dans les réacteurs rapides commerciaux est en effet légèrement supérieur à ceux que l'on obtient actuellement dans les réacteurs expérimentaux. L'inconvénient majeur de ce mode d'irradiation est qu'il ne permet pas de tester l'influence des divers paramètres qui régissent le gonflement. Certains expérimentateurs ont donc fait porter leurs efforts sur des méthodes de simulation (bombardement aux ions ou aux électrons) qui permettent d'obtenir en quelques heures des taux de dommage qui nécessiteraient plusieurs mois voire plusieurs années d'irradiation en pile.

1.2 - Irradiations aux ions

Comme l'irradiation aux neutrons, l'irradiation aux ions crée des cascades de déplacement. Les effets observés sont les mêmes que pour les irradiations aux neutrons s'il est tenu compte du déplacement vers les hautes températures du domaine de gonflement. On pense que ce déplacement est dû au taux de production de défauts plus élevé obtenu par bombardement ionique.

Certaines précautions doivent être prises dans l'interprétation des résultats :

- Si l'énergie de l'ion incident est faible, son parcours moyen sera de l'ordre de 1000 à 2000 Å et il faudra tenir compte de la proximité des surfaces.
- Si l'ion incident et la cible ne sont pas de même nature, le bombardement introduira dans le métal des impuretés qui peuvent affecter les différents processus.
- Si la cible et l'ion incident sont de même nature, l'irradiation introduira néanmoins des interstitiels supplémentaires.

Des considérations théoriques (12) et des comparaisons entre des irradiations d'un même métal par des ions de natures différentes (13) ont montré que, pour des doses d'irradiation moyennes et dans le cas où le nombre de paires lacune - interstitiel créées par l'ion est de l'ordre de 10^4 , ces deux derniers effets ne produisent pas d'erreur significative.

1.3 - Irradiations aux électrons

L'irradiation aux électrons ne produit pas de cascades de déplacement mais une densité uniforme de paires de Frenkel. Malgré un taux de production de défauts bien supérieur à ceux obtenus aux neutrons on trouve que les domaines de température pour le gonflement sont à peu près les mêmes.

Ce mode d'irradiation présente deux avantages:

- Possibilité d'une observation continue pendant l'irradiation.
- Absence de produits de transmutation et non introduction d'impuretés ou d'interstitiels supplémentaires.

Les échantillons utilisés étant obligatoirement des lames minces, les effets de surface sont importants. Pour faire germer des cavités au cours d'un bombardement électronique, il faut préalablement former un réseau stable de dislocations. Dans les aciers, ce réseau se forme directement par irradiation à haute température (14). Pour les métaux purs, il faut faire précéder l'irradiation à haute température, soit d'une implantation de gaz

ou d'une irradiation aux neutrons (15,16), soit d'une irradiation aux électrons à basse température (17).

2 - RESULTATS EXPERIMENTAUX

Mise à part quelques **différences** entre les différents modes d'irradiation que nous venons de signaler, les effets observés en ce qui concerne le gonflement sont qualitativement les mêmes.

2.1 - Influence de la température d'irradiation

La plupart des métaux purs et des alliages gonflent dans le domaine de température $0,2 - 0,5 T_f$ (T_f = température de fusion). Seul l'or et le titane ne gonflent pas. Le gonflement passe par un maximum aux environs de $0,3 T_f$. Quand la température d'irradiation augmente, la taille moyenne des cavités croît et leur densité diminue.

2.2 - Influence de la dose

Pour des doses d'irradiation identiques on trouve que le gonflement des métaux purs est beaucoup plus important que celui des aciers. Le gonflement augmente linéairement avec la dose (voir par exemple 18, 19). Pour les métaux purs, la densité de cavités croît tout d'abord, puis se sature à partir d'une certaine dose. La taille moyenne des cavités, quant à elle, augmente avec la dose. A partir d'une certaine dose, l'augmentation du gonflement est donc essentiellement dû à la croissance des cavités. Pour les aciers irradiés aux neutrons les résultats diffèrent : certains auteurs (20) trouvent une saturation de la densité de cavités, d'autres (21) trouvent que celle-ci croît pendant toute la durée de l'irradiation.

2.3 - Influence du flux instantané à dose constante

Cet effet a été peu étudié et les résultats varient suivant les auteurs. Nous avons déjà signalé que le décalage en température entre les irradiations aux ions et celles aux neutrons est attribué à la différence entre les flux instantanés obtenus avec ces deux modes d'irradiation.

Les seules études systématiques qui ont été faites l'ont été pour des irradiations aux neutrons. Dans les aciers on ne trouve pratiquement

aucun effet (6). Dans l'aluminium, Packan (22) et Risbet (19) ne trouvent pas d'effet sur le gonflement mais trouvent que la densité croît et que la taille moyenne diminue quand le flux instantané croît. Dans le cuivre M. Labbé et J.P. Poirier (23) trouvent que le gonflement décroît quand le flux instantané croît et que le maximum de gonflement est déplacé vers les hautes températures; mais la variation de la taille moyenne et de la densité de cavités n'est pas monotone.

2.4 - Influence des impuretés

- Impuretés gazeuses

La plupart des auteurs considèrent que les impuretés gazeuses sont responsables de la stabilisation des amas de lacunes. En particulier l'hélium produit par les réactions (n, α) jouerait un grand rôle. Quel que soit le mode d'irradiation, et que ce soit pour les métaux purs ou pour les aciers on trouve qu'une addition d'hélium avant l'irradiation conduit à une augmentation de la densité de cavités (11, 14, 19, 24).

- Impuretés métalliques

L'effet des impuretés métalliques est beaucoup plus complexe que l'effet des impuretés gazeuses. Elles peuvent en effet interagir soit avec les interstitiels, soit avec les lacunes, soit avec les atomes de gaz en solution. Elles peuvent d'autre part changer les caractéristiques du matériau en modifiant l'énergie de faute ou l'énergie de surface.

CHAPITRE III

METHODES EXPERIMENTALES

1 - MATERIAU

On a utilisé du cuivre Jonhson - Matthey de pureté normale 99,99%₁₀₀.
L'analyse spectroscopique des impuretés métalliques est donnée dans le tableau I. L'analyse des impuretés gazeuses est donnée dans le tableau II.

TABLEAU II

Elément	Teneur (ppm at.)	Elément	Teneur (ppm at.)
Al	traces	Mn	< 1,2
Ag	< 8,5	Ni	< 3
B	< 3	P	< 10
Be	< 3,5	Pb	< 0,3
Bi	< 6 x 10 ⁻²	Sb	< 1,5
Cd	< 0,6	Si	< 11
Co	< 5	Sn	< 0,5
Cr	< 1,2	Te	< 5
Fe	< 17	Zn	< 10
Mg	< 5		

TABLEAU III

Elément	Teneur (ppm at.)	Elément	Teneur (ppm at.)
He	< 3 x 10 ⁻²	O	< 48
H	< 12,4	C	< 48
N	< 14		

2 - PREPARATION DES LAMES MINCES

Nous avons utilisé deux méthodes de polissage des échantillons que nous appellerons M₁ et M₂.

M_1 : Les échantillons sont d'abord préamincis dans l'acide nitrique puis polis électrolytiquement dans un bain composé d'une partie d'acide nitrique et de deux parties d'alcool méthylique. La température du bain est de -35°C et la tension appliquée de 7 à 8 volts. La cathode est en cuivre.

M_2 : On découpe des pastilles de 3 mm de diamètre dans les feuilles de cuivre. Ces pastilles sont alors amincies à l'aide d'un appareil de polissage par jet immergé (Télupol). La solution utilisée est l'électrolyte D_2 . La température est de $+15^{\circ}\text{C}$ et le courant total de 0,23 A ce qui correspond à une tension appliquée de 12 à 12,5 volts.

Les lames minces ainsi préparées sont rincées dans l'alcool méthylique pur.

3 - IRRADIATIONS AUX IONS ET IMPLANTATIONS

Les échantillons sont placés dans un porte objet en cuivre comprenant quatre logements. Ce porte objet s'adapte sur un four (Fig. 2) qui permet d'atteindre des températures légèrement supérieures à 700°C . La température est mesurée à l'aide de deux thermocouples solidaires du porte objet. Cette température est réglée à mieux que $\pm 1^{\circ}\text{C}$. Le vide réalisé dans l'enceinte par une pompe turbomoléculaire est de l'ordre de 10^{-8} Torr.

Pendant toute la durée de l'irradiation on mesure le courant total reçu par le porte échantillons. On peut également mesurer le courant d'ions reçu par chaque échantillon à l'aide d'une sonde escamotable sur laquelle sont montés cinq cylindres de Faraday (Fig. 2).

Le faisceau d'ions est obtenu au moyen d'un accélérateur électrostatique de type classique. La source d'ions du type Thonemann a été modifiée pour produire aussi bien des ions métalliques que des ions gazeux (Fig. 1). Des ions et des atomes neutres du canal d'extraction sont arrachés par les ions Krypton du plasma. Certains d'entre eux passent dans le plasma et ils se retrouvent dans le faisceau extrait de la source. Après accélération dans un tube à champ constant, le faisceau traverse un électroaimant qui permet de trier les ions choisis. Au moyen d'une optique

électrostatique on focalise plus ou moins le faisceau ce qui permet d'irradier uniformément les quatres échantillons. La tension d'accélération maximum est de 500 Kev.

4 - OBSERVATIONS ET MESURE DU GONFLEMENT

Après irradiation, les lames minces sont observées en microscopie électronique par transmission. Toutes les observations ont été faites à l'aide d'un microscope Philips EM 300. Le diamètre des cavités ainsi que leur densité ont été mesurés à partir d'agrandissements photographiques en utilisant un analyseur de particules Zeiss. La valeur du gonflement est donnée par le rapport $\frac{\Delta V}{V}$; ΔV étant le volume total des cavités et V le volume de matière les contenant. Les cavités sont donc assimilées à des sphères et les valeurs obtenues pour ΔV sont des valeurs par défaut.

Les mesures d'épaisseur des lames et d'épaisseur de la zone contenant les cavités ont été faites en stéréoscopie : des paires stéréo sont prises en faisant basculer l'échantillon afin d'obtenir deux images de la même région faisant entre elles un angle Φ . Une vision stéréoscopique des cavités peut être obtenue en basculant l'échantillon autour d'un axe quelconque. Mais, pour obtenir une vision stéréoscopique des dislocations, il faut basculer l'échantillon autour d'un axe parallèle à une réflexion de Bragg. Le microscope doit donc être muni d'une platine goniométrique permettant un basculement autour de n'importe quel axe. C'est le cas du Philips EM 300 qui est en plus muni d'un système permettant de corriger la hauteur de l'échantillon ce qui permet de prendre les deux micrographies constituant la paire stéréo au même grandissement. Un appareil de vision stéréoscopique permet de mesurer la parallaxe entre deux points situés sur une même verticale. La différence de hauteur entre ces deux points est donnée par la relation simple :

$$h = \frac{P}{2 M \sin (\Phi / 2)}$$

où h est la différence de hauteur

P la parallaxe

M le grandissement

Φ l'angle total de basculement

La mesure des épaisseurs de lames par cette méthode permet d'éliminer du calcul du gonflement les erreurs dues à un mauvais étalonnage des grossissements du microscope.

Au total, on peut estimer que la précision sur les valeurs de gonflement obtenues est comprise entre 20 et 30 pour cent.

5 - MESURE DE LA DENSITE DE LIGNES DE DISLOCATION

La densité de lignes de dislocation est donnée par la formule :

$$\rho_d = \frac{R}{V}$$

où R est la longueur réelle de lignes de dislocation et V le volume les contenant.

Bailey et Hirsch (44) ont montré que R est relié à la longueur projetée R_p par la relation :

$$R = \frac{4}{\pi} R_p$$

Les dislocations étant rarement des lignes droites la mesure de R_p est une procédure assez longue à moins que l'on utilise la méthode des intersections de Smith et Guttman (45). La méthode est la suivante : sur une surface A on trace des lignes au hasard. Si le nombre de points d'intersection de ces lignes avec les dislocations est N et leur longueur totale L, R_p est donné par :

$$R_p = \frac{\pi N A}{2 L}$$

on a alors :

$$\rho_d = \frac{R}{A t} = \frac{4}{\pi} \frac{\pi N A}{2 L t A}$$

$$\rho_d = \frac{2 N}{L t}$$

où t est l'épaisseur de la lame.

Cette méthode est applicable pour des densités de dislocations comprises entre $2 \text{ à } 3 \times 10^8$ jusqu'à 10^{11} .

La visibilité des lignes de dislocation dépendant de la réflexion

utilisée, nous avons toujours utilisé pour ces mesures un vecteur du type 200 . En moyenne, avec un tel vecteur, $1/3$ des dislocations sont invisibles. Nous avons donc multiplié les résultats de nos mesures par $3/2$.

Pour cette étude, au lieu de tracer des lignes au hasard, nous avons utilisé un quadrillage. Les mesures s'en trouvent être grandement simplifiées et nous avons vérifié que les mesures obtenues avec le quadrillage et le système de lignes tracées au hasard étaient les mêmes.

6 - ANALYSE CRISTALLOGRAPHIQUE DES BOUCLES DE DISLOCATIONS

L'analyse est basée sur les résultats des théories dynamique et cinématique de la diffraction des électrons (46). Nous nous sommes placés dans des orientations sûres telles qu'elles sont définies par Maher et Eyre (47): pour ces orientations, les boucles peuvent être traitées comme des boucles purement coin et la connaissance de la direction de leur vecteur de Burgers et de son sens suffisent pour déterminer leur nature (lacunaire ou interstitielle). La méthode est détaillée dans l'annexe n° II .

7 - IRRADIATIONS AUX ELECTRONS

Les irradiations et les observations ont été réalisées à l'aide du microscope de 1 Mev du CNRS - ONERA. Ce microscope est muni d'une platine chauffante pouvant être basculée autour de son axe de $\pm 35^\circ$. La température est mesurée à l'aide d'un thermocouple fixé sur le four. Le flux total d'électrons arrivant sur l'échantillon est mesuré au moyen d'une cage de Faraday placée sur un porte diaphragme et insérée au niveau du diaphragme de sélection. Le profil du faisceau est déterminé en déplaçant un diaphragme de sélection de 20μ le long des deux axes de symétrie du faisceau. Pour tous les points, le courant reçu par l'écran est relevé et les différentes positions du diaphragme sont photographiées sur une même plaque. Pendant cette opération le microscope fonctionne en aire sélectionnée. L'écran étant calibré par rapport à la cage de Faraday on peut ainsi connaître avec une bonne précision le flux d'électrons reçu par l'échantillon. La figure 3 représente le profil obtenu.

Pendant les irradiations, le diaphragme du condenseur est enlevé. Pour connaître l'élévation de température locale due au faisceau nous avons observé la transformation ordre-désordre dans Cu_3Au . La température à laquelle cette transformation se produit est en effet bien définie (390°C) et est caractérisée par l'apparition ou la disparition de taches supplémentaires sur le diaphragme de diffraction. Nous avons trouvé que pour les conditions d'irradiation utilisées cette élévation de température locale est inférieure à 10°C . Les températures d'irradiation indiquées par la suite sont celles mesurées au moyen du thermocouple.

CHAPITRE IV

RESULTATS EXPERIMENTAUX DES IRRADIATIONS AUX IONS

Mise à part l'étude de l'effet de la dose pour laquelle nous avons utilisé des échantillons massifs toutes les irradiations ont été réalisées sur des lames minces.

1 - OBSERVATIONS GENERALES

1.1 - Forme des cavités

Les cavités ont généralement la forme d'octaèdres réguliers dont les faces sont des plans $\{111\}$ tronqués par des plans $\{100\}$ (Fig. 4). On observe également de petites troncatures par des plans $\{110\}$. Cette forme résulte de l'anisotropie de l'énergie de surface et montre que celle-ci est minimale pour les plans $\{111\}$. Pour des irradiations faites à 500°C et au-dessus, certaines cavités s'éloignent de façon notable de cette forme (Fig5 c), ce qui peut laisser penser à de la coalescence.

1.2 - Vecteur de Burgers des boucles de dislocation

Toutes les boucles de dislocation résolues, qu'elles soient lacunaires ou interstitielles, ont des vecteurs de Burgers de type $\frac{a}{2} \langle 110 \rangle$. Ce sont donc des boucles parfaites. Leur plan est en général compris entre des plans du type $\{111\}$ et $\{110\}$.

2 - EFFET DES PARAMETRES DE L'IRRADIATION SUR LE GONFLEMENT

Nous exposerons séparément l'effet de la dose, les conditions expérimentales n'étant pas les mêmes que celles utilisées pour l'étude des autres effets.

Nous avons exploré le domaine de températures 400°C - 550°C, et utilisé deux flux instantanés dans un rapport dix : le flux Φ et le flux $\Phi/10$. Le temps d'irradiation a été pris constant et égal à 3 heures. Dans ces conditions, les irradiations au flux Φ correspondent à 30 dpa et celles au flux $\Phi/10$ à 3 dpa (cf. I.1.2).

Les lames minces utilisées pour cette partie de l'étude ont été préparées par le méthode M_1 (cf. III.2).

2.1 - Aspect des lames minces

Pour un flux donné, l'aspect des lames dépend de leur épaisseur et de la température d'irradiation (Fig. 5):

- à basse température (400°C) les défauts d'irradiation se présentent sous forme de points noirs qui sont des petites boucles de dislocation non résolues, de boucles résolues et de lignes de dislocations, sauf dans les parties très minces où l'on n'observe que des points noirs. Pour le flux $\Phi/10$ uniquement, en plus de ces défauts, des cavités sont présentes dans les zones dont l'épaisseur est supérieure à $1500 \text{ \AA}$. A cette température, et pour les deux flux, toutes les boucles de dislocation sont lacunaires.

- à une température intermédiaire (450°C pour les deux flux) on observe, dans les zones dont l'épaisseur est supérieure à $2000 \text{ \AA}$, des cavités reliées entre elles par un réseau de dislocations. Des points noirs sont visibles dans les zones dont l'épaisseur est comprise entre 500 et $2500 \text{ \AA}$. Aucun défaut n'est visible en dessous de $500 \text{ \AA}$.

- à haute température (500°C pour le flux Φ) on n'observe pratiquement plus de points noirs. Des cavités reliées entre elles par des dislocations sont présentes dans les zones dont l'épaisseur est supérieure à $2500 \text{ \AA}$.

- à des températures plus élevées ($> 500^{\circ}\text{C}$ pour le flux $\Phi/10$ et $> 550^{\circ}\text{C}$ pour le flux Φ) on n'observe plus aucun défaut d'irradiation.

2.2 - Effet de la température d'irradiation sur le gonflement

Les résultats sont consignés dans le tableau IV . La figure 6 représente la variation du taux de gonflement en fonction de la température pour les deux flux considérés. On constate qu'il passe par un maximum qui se situe à 450°C pour le flux $\Phi/10$ et à 500°C pour le flux Φ .

Le diamètre moyen des cavités augmente avec la température ainsi que la différence entre le diamètre de la plus grosse cavité et celui de la plus petite (Fig. 7). Pour le flux Φ , la densité de cavités diminue quand la température augmente. Pour le flux $\Phi/10$, cette densité est la même pour des irradiations faites à 400°C et 450°C . Les densités de dislocations suivent à peu près les variations des densités de cavités. Pour toutes ces

TABEAU IV

Conditions d'irradiation		Traitement avant Irradiation	Φ_m (Å)	d (cavités) (cm ⁻³)	d (dislocations) (cm ⁻²)	$\frac{\Delta V}{V}$ %
Flux instantané	T (°C)					
Flux $\Phi/10$	400	Cuivre	300	8×10^{13}	$5,5 \times 10^9$	0,13
	450	Brut	900	8×10^{13}	4×10^9	3,2
	500		0	0	0	0
Flux Φ	400	Cuivre Brut	0	0	0	0
	450		1000	6×10^{13}	5×10^9	3,4
	500		2100	2×10^{13}	10^9	9
	530		2200	6×10^{12}	3×10^8	3,2
	550		0	0	0	0
Flux Φ	450	Recuit 1/2 heure à 600°C	1000	6×10^{12}		1
		Recuit 1/2 heure à 700°C	-	q.q. une	-	0
Flux Φ	450	Cuivre brut im- planté avec 100 ppm at. d'hélium	750	8×10^{13}		4,1
	530		1900	2×10^{13}		12

irradiations, la valeur du rapport $\frac{\text{densité de cavités}}{\text{densité de dislocations}}$ est compris entre 1 et 2×10^4 .

2.3 - Effet du flux instantané à temps d'irradiation constant

Le temps d'irradiation étant constant, les doses totales sont dans le rapport des flux instantanés. On voit (Fig. 6) qu'un accroissement du flux instantané par un facteur 10 provoque un déplacement du pic de gonflement de 50°C vers les hautes températures. Dans un domaine de températures situé autour de 400°C , il se forme des cavités dans le cuivre irradié au flux $\Phi/10$ et il ne s'en forme pas dans le cuivre irradié au flux Φ .

3 - EFFET D'UN RECUIT SOUS VIDE AVANT IRRADIATION

Les lames minces ont été recuites in situ dans l'accélérateur ionique pendant 30 minutes sous bon vide ($\approx 2 \times 10^{-8}$ Torr). Trois températures de recuit ont été étudiées : 450°C , 600°C et 700°C . Les conditions d'irradiation sont les mêmes dans tous les cas : 450°C flux Φ .

3.1 - Effet d'un recuit à 450°C

La seule différence par rapport à une irradiation sans recuit préalable est la présence de grandes boucles de dislocation dans les zones minces des lames, l'analyse montre que 90 % d'entre elles sont lacunaires et 10 % sont interstitielles. Dans les zones où les boucles voisinent avec les cavités, 90 % d'entre elles sont interstitielles et 10 % lacunaires.

3.2 - Effet d'un recuit à 600°C

La densité de cavités se trouve être diminuée ainsi que le gonflement (Tableau IV). La répartition en taille des cavités obtenues sur ces échantillons présente deux maxima (Fig. 8). Des boucles de dislocation sont présentes dans toutes les régions de la lame. Dans les zones minces, on les trouve toutes lacunaires. Dans les zones épaisses (supérieures à $2000 \text{ \AA}$) où des cavités sont présentes, 90 % des boucles sont lacunaires et 10 % sont interstitielles.

3.3 - Effet d'un recuit à 700°C

On ne trouve plus que des cavités isolées (Fig. 9c) et quelques boucles de dislocation qui sont toutes lacunaires.

4 - EFFET D'UNE PREINJECTION DE GAZ

Cet effet a été étudié sur des échantillons recuits in situ dans l'accélérateur ionique à 700°C pendant 1/2 heure sous un vide de 2×10^{-8} Torr. Après le recuit, ces échantillons ont été implantés en gaz par bombardement ionique. Nous avons étudié plusieurs gaz pour des raisons bien spécifiques :

- l'hélium car c'est le gaz le plus couramment produit lors des réactions nucléaires et c'est aussi celui qui a été le plus étudié. Dans une matrice de cuivre l'hélium est supposé être en position interstitielle à basse température (< 450°C) et passer en position substitutionnelle à plus haute température (49).

- l'oxygène et l'hydrogène sont deux gaz résiduels que l'on trouve dans le cuivre brut. Ils sont tous les deux supposés être en position interstitielle dans la matrice quelle que soit la température (50,51).

- le krypton, par contre est supposé être en position substitutionnelle, même à très basse température (48).

Le tableau V donne les énergies respectives utilisées pour l'implantation, le parcours moyen des ions ainsi que les coefficients de diffusion de ces gaz dans le cuivre que l'on trouve dans la littérature. Les implantations en hélium, oxygène et krypton ont été faites à 200°C celles en hydrogène à température ambiante. Les concentrations en ppm.at. ont été calculées en supposant que les ions se répartissaient uniformément dans une couche d'épaisseur 3000 Å.

4.1 - Effet de l'hélium

4.1.1. - Irradiations à 450°C flux Φ

Les résultats sont consignés dans le tableau VI . La figure 14 montre l'évolution de la microstructure en fonction de la dose d'hélium.

La densité de cavités ainsi que le gonflement croissent tout d'abord avec la dose d'hélium jusqu'à 30 ppm.at. Ensuite on observe un palier puis une décroissance pour les fortes doses d'hélium. La densité de dislocations quant à elle croît constamment. La taille moyenne des cavités suit une variation inverse de la densité. (Fig. 10, 12 et 13)

4.1.2 - Irradiations à 500°C flux Φ

Il faut atteindre des doses supérieures à 30 ppm.at. pour voir apparaître des cavités. La densité de cavités et de dislocations ainsi que le gonflement croissent avec la dose d'hélium mais le diamètre moyen des cavités décroît. Le tableau VI et la figure 15 résument les résultats obtenus.

4.2 - Effet de l'oxygène

4.2.1 - Irradiations à 450°C flux Φ

La densité de cavités est pratiquement constante dans tout le domaine étudié. Le gonflement par contre diminue quand la teneur en oxygène augmente; cette diminution étant due à une diminution de la taille moyenne des cavités (Tableau VII et figure 16). La densité de dislocations croît avec la teneur en oxygène. (Fig. 11, 12 et 13)

4.2.3 - Irradiations à 500°C flux Φ

Les résultats qualitatifs sont les mêmes que ceux obtenus avec l'hélium. (Tableau VII et figure 17).

4.3 - Effet du krypton

Nous avons étudié deux concentrations : 10 ppm.at. et 50 ppm. at., et une seule température d'irradiation : 450°C flux Φ . Nous avons observé quelques cavités dans l'échantillon contenant 10 ppm.at. et pas du tout dans celui contenant 50 ppm.at. (Fig. 18a). On constate pour ces deux échantillons la présence de boucles de dislocation en plus d'une forte densité de lignes de dislocations. Ces boucles sont toutes lacunaires dans l'échantillon contenant 10 ppm.at.; dans l'échantillon contenant 50 ppm.at. leur caractère dépend de leur taille : les grandes sont interstitielles, les petites sont lacunaires.

TABLEAU V

	Coefficient de diffusion (cm ² s ⁻¹)		Référence	Energie des ions implantés (Kev)	Parcours moyen dans le cuivre ° (Å)
	450°C	400°C			
Kr	2 x 10 ⁻¹⁵	2 x 10 ⁻¹⁶	52	500	1200
O ₂	3,16 x 10 ⁻¹⁰ ≈ 3,7 x 10 ⁻⁷	2,95 x 10 ⁻¹⁰ ≈ 1,3 x 10 ⁻⁷	53 50	60	1500
He	≈ 1,5 x 10 ⁻⁶	1,7 x 10 ⁻⁹	54	18	2000
H ₂	1,75 x 10 ⁻⁵	1,1 x 10 ⁻⁵	51	13	2000

TABLEAU VI

Conditions d'irradiation	Teneur en Hélium	Φ _m (Å) (p.p.m.at.)	d (cm ⁻³)	ρ _d (cm ⁻²)	Δ V V %
450°C FLUX Φ	1	1150	3 x 10 ¹³	1,8 x 10 ⁹	2,5
	5	1050	6 x 10 ¹³	2,7 x 10 ⁹	4
	15	930	9 x 10 ¹³	3,1 x 10 ⁹	4,5
	30	900	10 ¹⁴	4 x 10 ⁹	5
	100	950	4 x 10 ¹³	7,5 x 10 ⁹	1,5
500°C FLUX Φ	30	-	-	-	-
	50	2100	10 ¹³	6 x 10 ⁸	5,7
	100	1500	6 x 10 ¹³	3 x 10 ⁹	14

TABLEAU VII

Conditions d'irradiation	Teneur en Oxygène (p.p.m.at.)	Φ _m (Å)	d (cm ⁻³)	ρ _d (cm ⁻²)	Δ V V %
450°C FLUX Φ	7	1350	3 x 10 ¹³	1,7 x 10 ⁹	4
	40	1300	3 x 10 ¹³	2,7 x 10 ⁹	3,7
	105	1200	2,7 x 10 ¹³	5,3 x 10 ⁹	2,5
500°C FLUX Φ	30	-	-	-	-
	70	2450	7,4 x 10 ¹²	3,5 x 10 ⁹	6,3
	110	2200	1,5 x 10 ¹³	5,5 x 10 ⁹	10

4.4 - Effet de l'hydrogène

Nous avons pris ici des précautions particulières :

- implantation à température ambiante
- montée en température rapide pour minimiser le temps de recuit avant irradiation
- implantation en gaz et irradiation aux ions réalisées à une heure d'intervalle.

Nous avons implanté 100 ppm.at. dans trois types d'échantillons : recuits, recuits puis écrouis et du cuivre brut. L'aspect de tous ces échantillons après une irradiation à 450°C flux Φ est le même que celui des échantillons de même nature non implantés. Il semble donc que l'hydrogène, ou bien diffuse hors des lames avant l'irradiation ou n'a pas d'effet sur les dommages créés.

4.5 - Effet de l'hélium implanté dans du cuivre brut

Nous avons implanté 100 ppm.at. d'hélium dans du cuivre brut et fait des irradiations au flux Φ à deux températures : 450°C et 530°C.

- à 450°C, le gonflement et la densité de cavités sont légèrement supérieurs à ceux obtenus pour du cuivre brut non implanté mais nettement supérieurs à ceux obtenus pour du cuivre recuit implanté avec la même dose d'hélium.

- à 530°C, le gonflement et la densité de cavités sont environ quatre fois supérieurs à ceux obtenus pour du cuivre brut non implanté (Fig.18b et tableau IV).

5 - EFFET DE LA DOSE D'IRRADIATION

Ces expériences devraient permettre d'obtenir des indications sur les mécanismes de germination car elles offrent la possibilité de suivre pas à pas la manière dont les défauts s'éliminent. Toutes les irradiations ont été faites à 450°C flux Φ . On a utilisé des lames épaisses de cuivre brut et de cuivre recuit à 700°C pendant une heure sous un vide de 6×10^{-9} Torr. Nous avons utilisé des lames épaisses pour deux raisons :

- comparer les lames minces et épaisses du point de vue du gonflement

nous avons vu que dans les lames minces, pour ces conditions d'irradiation, des cavités sont présentes dans des zones dont l'épaisseur est supérieure à 2000 Å. En fait, toutes les observations sur des lames minces ont été faites sur des plages dont l'épaisseur est comprise entre 3500 Å et 4500 Å; l'épaisseur de la zone contenant les cavités étant comprise entre 2000 Å et 3000 Å. Pour de telles épaisseurs, il est très difficile sinon impossible de voir des cavités dont le diamètre est inférieur à 500 Å. Comme nous désirions pouvoir faire des observations des premiers stades de la formation des cavités, il était impératif de pouvoir amincir l'échantillon après irradiation.

5.1 - CUIVRE_RECUIT_SOUS_VIDE

Dans ces échantillons et pour les trois doses étudiées (0,83; 1,67 et 30 dpa) on n'observe pratiquement pas de défauts d'irradiation (Fig. 19).

5.2 - CUIVRE_BRUT

Les résultats obtenus pour les cinq doses étudiées sont consignés dans le tableau n°VIII.

On peut pratiquement séparer les variations des différentes quantités en fonction de la dose en deux intervalles (Fig. 20) :

a) De 0 à 3 dpa

- La densité de cavités croît.
- La taille moyenne des cavités augmente en suivant une loi en t^α avec α voisin de $\frac{1}{2}$.
- Le gonflement augmente en suivant une loi en t^α avec α voisin de $\frac{3}{2}$.

b) De 3 à 30 dpa

- La densité de cavités décroît.
- Le gonflement et la taille moyenne des cavités croissent linéairement en fonction du temps.

5.2.1 - Evolution de la microstructure

Mise à part l'irradiation d'une heure (Fig. 22 a) la densité de cavités et leur taille moyenne ne varient pratiquement pas d'une plage à une autre dans le même échantillon. Il est possible que les échantillons irradiés

pendant 1 heure aient subit un léger écrouissage avant l'irradiation ou que cette répartition soit due à la coalescence des cavités.

Après 5 minutes d'irradiation on observe que toutes les cavités sont situées au voisinage ou sur des lignes ou des boucles de dislocations. L'analyse montre que toutes ces boucles sont de nature interstitielle. Leur densité est à peu près égale à la moitié de la densité de cavités (Fig. 21 a). Pour des durées d'irradiation supérieures on n'observe plus que quelques boucles et toutes les cavités sont reliées entre elles par des lignes de dislocations (Fig. 21 et 22).

TABLEAU VIII

Conditions d'irradiation	Dose (d.p.a.)	ϕ_m (A)	d (cm^{-3})	ρ_d (cm^{-2})	$\frac{\Delta V}{V}$ %
450°C FLUX ϕ	0,83	190	$3,2 \times 10^{14}$	8×10^8	0,16
	1,67	270	$3,4 \times 10^{14}$	3×10^9	0,43
	3	340	4×10^{14}		0,88
	10	420	$3,2 \times 10^{14}$		1,41
	30	660	$1,8 \times 10^{14}$	7×10^9	3

TABLEAU IX

Température d'irradiation (°C)	ϕ_{m_0} (A)	d (cm^{-3})	ρ_d (cm^{-2})	$\frac{\Delta V}{V}$ %
250	670	$3,8 \times 10^{13}$	3×10^9	0,64
300	800	6×10^{13}	$2,5 \times 10^9$	1,7
344	1220	$2,5 \times 10^{13}$	$1,7 \times 10^9$	2,8
400	2060	$2,9 \times 10^{12}$	8×10^8	1,8

CHAPITRE V

RESULTATS EXPERIMENTAUX DES IRRADIATIONS
AUX ELECTRONS

Les électrons de 1 Mev ne produisant pas de cascades dans le cuivre, il est intéressant de comparer les résultats obtenus avec ceux obtenus aux ions. Les irradiations sont obligatoirement faites sur des lames minces. Nous avons utilisé un flux moyen d'environ 3 A/cm^2 correspondant à $1,3 \times 10^{-3} \text{ dpa/s}$ pour $E_d = 19 \text{ eV}$, nous l'appellerons le flux Φ' .

1 - CUIVRE BRUT

Sauf indication contraire l'épaisseur des zones irradiées est d'environ 1μ . Les conditions de diffraction pendant l'irradiation sont les suivantes :

- plan moyen de la lame : $\{110\}$
- vecteur diffractant : $\langle 200 \rangle$
- l'écart à l'angle de Bragg: $s > 0$

1.1 - Irradiations à une température fixée

- à basse température ($< 100^\circ\text{C}$) il se forme des boucles de dislocations imparfaites de nature interstitielle. Ces boucles croissent au cours du temps et finissent par former un réseau dense de dislocations.

- à haute température (400°C et 500°C), il se forme peu de défauts. Ces boucles croissent jusqu'à atteindre les surfaces des lames et s'éliminent.

- à une température intermédiaire (250°C et 300°C), il se forme des boucles de dislocations. Au centre du faisceau ces boucles croissent et interagissent entre elles pour former un réseau de lignes de dislocations de faible densité. Ces dislocations une fois formées montent et vont s'éliminer sur les surfaces.

1.2 - Irradiations à basse température ($< 100^\circ\text{C}$) suivies d'irradiations à plus haute température (300°C)

A la suite de Makin (17) nous avons essayé de former un réseau stable de dislocations en irradiant à basse température, puis de continuer l'irradiation à une température se situant dans le domaine où des cavités sont susceptibles de se former. Les effets observés dépendent radicalement de l'épaisseur de la lame irradiée.

- Pour des lames d'épaisseur inférieure à environ $5000 \text{ \AA}$, au centre du faisceau, les dislocations formées au cours de l'irradiation à basse

température montent et finissent toujours par s'éliminer sur les surfaces. A la périphérie, des boucles de faute croissent jusqu'à une certaine taille, puis semblent se stabiliser. On ne forme pas de cavités (Fig. 23). Il a de plus été observé que si l'on abaisse alors la température à l'ambiante, on ne forme plus de défaut en réirradiant la plage qui était au centre du faisceau mais l'on peut encore en former dans les plages qui n'avaient pas été irradiées auparavant.

- Pour des lames d'épaisseur supérieure à environ 5000 Å, le réseau de dislocations formé reste stable et après un temps d'irradiation assez long on voit apparaître des cavités. Au bout de 3 heures d'irradiation celles-ci sont à peine visibles. Leur densité est très forte mais leur diamètre moyen très faible ($\simeq 200$ Å). Le contraste obtenu est donc très mauvais, ce qui rend toute mesure quantitative délicate (Fig. 24).

2 - CUIVRE CHARGE EN HELIUM

Le chargement a été effectué dans des lames dégazées sous vide suivant la méthode déjà décrite pour les irradiations aux ions. La concentration moyenne en hélium a été calculée en supposant que les ions se répartissaient uniformément dans une lame de 6000 Å d'épaisseur.

2.1 - Cuivre contenant entre 8 et 50 ppm.at. d'hélium

Dans ce domaine de concentrations le cuivre implanté se comporte exactement comme le cuivre brut irradié dans les mêmes conditions

2.2 - Cuivre contenant environ 100 ppm.at. d'hélium

L'irradiation aux ions He^+ provoque la formation de défauts d'irradiation. Sur les échantillons irradiés à forte dose, on observe une grande densité de points noirs dont nous n'avons pas déterminé la nature exacte (Fig. 25a). Un recuit de quelques minutes in situ dans le microscope avant irradiation, à la température de 450°C fait disparaître ces défauts. L'aspect des lames minces après quelques minutes d'irradiation à 250°C ou à 450°C est de toute façon identique : qu'il y ait ou non recuit préalable il se forme un réseau dense de dislocations.

- La figure 25b montre l'aspect des lames après 2 heures d'irradiation

à 250°C. Les conditions de contraste et de mise au point sont telles que les cavités apparaissent ici comme des petites taches sombres.

- La figure 25c montre l'aspect des lames après 1 h 20 mn d'irradiation directe à 450°C.

3 - CUIVRE DEGAZE PAR RECUIT

3.1 - Cuivre recuit 1/2 heure à 700°C sous un vide de 4×10^{-8} Torr

a) A une température de 100°C la formation de défauts dépend de façon critique des conditions de diffraction pendant l'irradiation :

- avec $s > 0$, c'est-à-dire quand l'angle entre le plan réflecteur et la direction du faisceau incident est supérieur à l'angle de Bragg, on ne forme pas de défaut si ce n'est au voisinage immédiat des dislocations (Fig. 26a).

- avec $s < 0$, c'est-à-dire quand le plan réflecteur est parallèle au faisceau incident, on forme des boucles de dislocations (Fig. 26c).

b) Si après une irradiation à 100°C avec $s < 0$ on monte la température à 300°C et que l'on continue l'irradiation, on forme alors un réseau stable de dislocations et très rapidement l'on voit apparaître des cavités. Après 3 heures d'irradiation on constate que leur densité est beaucoup plus faible que dans le cuivre brut irradié dans les mêmes conditions, mais leur diamètre moyen beaucoup plus fort. On a vérifié d'autre part que si l'on introduit le réseau de dislocations par écrouissage des lames, les résultats obtenus sont les mêmes que précédemment pour une irradiation directe à 300°C.

On a vérifié également que l'on obtenait des résultats identiques aux précédents pour des lames recuites sous un vide de 4×10^{-8} Torr à 700°C pendant 1 heure et à 800°C pendant deux heures.

3.2 - Cuivre recuit 1 heure à 700°C sous un vide de 6×10^{-9} Torr

Dans de tels échantillons en irradiant à une température de 100°C pour $s < 0$ on forme également quelques boucles de dislocations. Mais, quand l'irradiation est poursuivie à 300°C, le réseau de dislocations formé n'est pas stable et l'on ne forme pas de cavité. Si l'on introduit un réseau stable de dislocations par écrouissage, après deux heures d'irradiation on voit apparaître quelques cavités. Ces cavités ne sont pas réparties uniformément

dans l'épaisseur de la lame mais semblent se situer dans un plan parallèle aux surfaces de celle-ci (Fig. 27).

Il semble donc que dans de tels échantillons la quantité de gaz résiduels dissouts est trop faible pour permettre la germination des cavités, mais que celle-ci devient possible aussitôt que des atomes de gaz composant la couche d'oxyde ont diffusé à l'intérieur de la matrice.

4 - INFLUENCE DES PARAMÈTRES DE L'IRRADIATION

Les expériences décrites précédemment nous ont permis de préciser les conditions de formation des cavités au cours d'une irradiation aux électrons et le rôle joué par les gaz dans la germination des amas de défauts. Compte tenu des résultats obtenus, nous avons décidé d'étudier l'influence des paramètres de l'irradiation sur deux types d'échantillons : le cuivre brut et le cuivre recuit.

4.1 - CUIVRE BRUT

Le seul paramètre qui ait été étudié est la température d'irradiation. Pour tous les échantillons, l'irradiation à haute température a été précédée d'une irradiation de 15 mn à 100°C au flux ϕ' .

A 450°C, du fait de la coalescence la densité de cavités décroît rapidement en fonction du temps. Ceci est particulièrement sensible au centre du faisceau où des cavités finissent par entrer en contact avec une des surfaces et par disparaître. On observe alors une diminution de l'épaisseur de la lame au centre du faisceau (Fig. 28 a). Après 2h30mn d'irradiation l'échantillon s'est percé au centre de la plage irradiée (Fig. 28 b). Il est probable que du fait de la forte augmentation de volume et de la disparition de certaines cavités à la surface, la température de la plage irradiée ne soit pas uniforme. L'existence d'un gradient de température ne fait qu'accentuer le processus. Nous nous sommes donc fixé une durée d'irradiation de 45 mn afin d'éviter ce phénomène. Le tableau X et la figure 29 résument les résultats obtenus.

On constate que le gonflement et la densité de cavités diminuent brutalement entre 500° et 550°C. Ceci est certainement dû à la fois à l'augmentation de la largeur des zones dénudées et au fait que les gaz commencent à diffuser hors de l'échantillon à une température voisine de 550°C. En effet, à cette température il faut irradier des zones très

TABLEAU X

Température d'irradiation (°C)	d	$\frac{\Delta V}{V}$ %
400	4×10^{14}	2,2
450	$1,3 \times 10^{14}$	4,65
500	$7,7 \times 10^{13}$	6
550	0	0

épaisses pour que le réseau de dislocations reste stable et si après l'irradiation à 550°C une autre plage du même échantillon est irradiée à 500°C il ne se forme pas de cavités.

Pour le cuivre brut, la position du maximum de gonflement est donc mal défini mais on peut dire qu'il se situe à une température égale ou supérieure à 500°C. On ne peut également donner la courbe complète de variation du gonflement en fonction de la température compte tenu de la difficulté de faire des mesures de densité et de gonflement dans le cuivre brut irradié à basse température.

4.2 - CUIVRE DEGAZE

Tous les échantillons dont nous nous sommes servis ont été recuits le même jour à 700°C pendant 1/2 heure dans un système de vide ne comportant qu'une pompe ionique. Le vide pendant le recuit était de 4×10^{-8} torr. Dans de tels échantillons l'on n'arrive pas à créer de réseau stable de dislocations en utilisant la méthode décrite précédemment. Par contre, il suffit d'un léger écrouissage préalable pour réussir à le former. Nous avons donc procédé de cette manière et nous avons vérifié que la densité de dislocations introduite initialement n'influe pas sur nos résultats. En fait, plus la densité de dislocations initiale est forte moins l'on crée de boucles en irradiant à basse température. D'autre part, si la densité de dislocations est trop élevée, elle décroît très rapidement dans les premiers temps de l'irradiation pour atteindre une valeur qui reste pratiquement constante pendant toute l'irradiation. Le temps total d'irradiation au flux ϕ' a été pris égal à trois heures; ce qui correspond à une dose de ≈ 14 dpa.

4.2.1 - Influence de la température d'irradiation

La figure montre l'évolution de l'aspect des lames. On trouve que le gonflement passe par un maximum qui se situe vers 360°C. La taille moyenne des cavités augmente avec la température et la densité de dislocations diminue. La densité de cavités quant à elle diminue avec la température au-dessus de 300°C, mais à 250°C elle est plus faible qu'à 300°C (Fig. 30 et 31).

4.2.2 - Influence de la dose

L'étude a été faite à 344°C et à 300°C. Dans les deux cas à partir du moment où la taille moyenne des cavités est suffisante pour

que des mesures soient possibles on trouve que le gonflement varie linéairement en fonction de la dose (Fig. 32) et que la taille moyenne suit une loi du type $\phi_m \propto t^{0,38}$ (Fig. 33). A 344°C la densité de cavités décroît quand la dose d'irradiation augmente mais elle croît légèrement à 300°C. Dans le premier cas cette variation est due à la coalescence des cavités (Fig. 34), dans le second elle peut être due à la germination de nouvelles cavités ou à des conditions de visibilité* (Fig. 35).

4.2.3 - Influence du flux instantané

Cette étude présente certaines difficultés. La réduction du flux instantané entraîne, en effet, une réduction sensible de la luminosité de la plage observée et oblige à irradier pendant des temps très longs.

Nous avons fait les expériences suivantes :

- Irradiation pendant 5 heures à 344°C au flux $\phi'/10$. Nous n'avons pas observé de cavité.
- Irradiation de 10 minutes à 344°C au flux ϕ' suivie d'une irradiation de 3h20mn à la même température au flux $\phi'/10$. Par rapport à une irradiation directe de 30 mn au flux ϕ' qui correspond à la même dose totale on constate que la densité de cavités est cinq fois plus faible mais que leur diamètre moyen est presque deux fois plus fort, le gonflement est légèrement supérieur (Fig. 36). A partir du moment où la germination des cavités est assurée une réduction du flux instantané par un facteur dix n'a donc que peu d'influence sur le gonflement à dose constante pour cette température d'irradiation.
- Irradiation de 30 mn à 100°C au flux $\phi'/10$ avec $s > 0$. Il se forme quelques boucles de dislocations (Fig. 37).

* La taille de la plus petite cavité observée est en effet de 300 Å. Il n'est donc pas exclu que lorsque la taille moyenne est faible certaines cavités échappent au comptage.

CHAPITRE VI

DISCUSSION

DISCUSSION

Ce chapitre comportera deux parties. La première partie sera consacrée à l'analyse phénoménologique de nos résultats expérimentaux que nous comparerons à ceux obtenus par d'autres auteurs et aux prévisions des modèles théoriques. Cette partie peut à son tour être divisée en deux. D'une part, une étude de la germination des cavités et des boucles d'interstitiels ainsi que de la croissance des cavités*. D'autre part, une étude des paramètres qui influent sur le gonflement : les paramètres liés à l'irradiation (température et flux instantané) et ceux qui sont liés au matériau (teneur en gaz et épaisseur des lames).

Dans la deuxième partie nous essayerons de préciser par quel mécanisme les cavités se forment en étudiant le rôle joué par les gaz, les dislocations et les cascades de déplacement dans la germination des amas de lacunes.

1 - ANALYSE PHÉNOMÉNOLOGIQUE DES DOMMAGES D'IRRADIATION

1.1 - CONDITIONS DE GERMINATION DES CAVITÉS ET DES BOUCLES D'INTERSTITIELS

1.1.1 - Le rôle des gaz dans la germination

Pour que des amas de défauts puissent se former, il faut, évidemment, que ces défauts soient en sursaturation dans la matrice. Mais nos expériences montrent clairement que, dans le domaine de températures étudié, les sursaturations moyennes induites par l'irradiation sont insuffisantes pour que les défauts précipitent d'eux-mêmes. Nous avons observé, en effet, que l'on ne formait que peu ou pas de cavités et de boucles d'interstitiels dans du cuivre bien dégazé. Cette observation ayant été faite pour des irradiations aux ions et aux électrons, on peut donc affirmer que pour ces deux types d'amas le germe est constitué de défauts de même nature et d'un ou plusieurs atomes de gaz.

Les cavités

Nous avons essayé de rendre compte de nos résultats expérimentaux obtenus aux ions en utilisant le modèle quasi-chimique de germination homogène mis au point par C. Fiche. Ce modèle est similaire à celui de

Katz et Wiedersich [37]. La figure n°38 donne les valeurs théoriques du taux de germination en fonction de la profondeur de pénétration dans une lame de cuivre d'épaisseur 3000 Å irradiée aux ions Cu^+ de 500 keV. On constate que des taux de production de défauts et une énergie de surface peu réalistes ont dû être utilisés pour aboutir à un taux de germination d'un ordre de grandeur raisonnable. On a pris en effet $S > 10^{-2}$ d.p.a. s^{-1} et $\gamma = 400$ ergs. Cette dernière valeur est quatre à cinq fois plus faible que celles que l'on peut trouver dans la littérature [55, 56]. D'autre part, le modèle prévoit à 450°C une variation considérable du taux de germination lorsque le taux de production de défauts est divisé par 10, alors qu'à 400°C l'effet est peu marqué, ce qui est en complète contradiction avec nos résultats expérimentaux. Le fait que ce modèle ne tienne pas compte du rôle joué par les gaz dissous; est certainement une des causes de son échec, mais nous allons voir que ce n'est pas la seule.

Les boucles d'interstitiels

A. Bourret [104] a étudié par des calculs de cinétique chimique, l'agglomération des interstitiels en amas, en considérant que ce sont les seules espèces mobiles. Il trouve que la présence d'impuretés favorise la germination. En partant des mêmes hypothèses, la simulation à l'ordinateur obtient des résultats identiques [105]. Le germe stable est supposé être le couple di-interstitiel-impureté. On a :

$$C_R^\infty = 2,56 \left(\frac{G}{\nu} \right)^{1/2} C_k^{1/2} \exp \frac{E_b + E_i}{kT}$$

avec : - C_R^∞ : concentration d'amas à saturation
 - G : concentration de défauts créés par unité de temps
 - ν : fréquence de vibration des atomes
 - C_k : concentration en impuretés
 - E_i : énergie de migration de l'interstitiel
 - E_b : énergie de liaison impureté-interstitiel.

D'après ce calcul, la concentration de boucles à saturation varie donc comme la racine carrée de la concentration en impuretés et exponentiellement en fonction de l'énergie de liaison impureté-interstitiel. Bourret trouve que l'on peut exprimer la concentration de boucles créée en présence d'impuretés en fonction de celle créée dans le matériau pur au moyen de la relation :

$$C_R^\infty (\text{impuretés}) = C_R^\infty (\text{pur}) \gamma^{1/2}$$

où $\gamma = 12 C_k \exp \frac{E_b}{kT}$

On peut pratiquement négliger la germination homogène si $\gamma \gg 1$. Pour une concentration de 1 ppm.at en impuretés ayant une énergie de liaison avec les interstitiels de 0,3 ev on obtient :

$$\gamma = 1,2 \times 10^{-5} \exp \frac{3,5 \times 10^5}{T}$$

C'est à dire que dans ce cas la germination aura toujours lieu sur des impuretés. Dans le domaine de températures que nous avons étudié, les lacunes et les impuretés sont mobiles; ce calcul ne s'applique donc pas. Il est intéressant néanmoins car il montre, dans le cas où il s'applique, c'est-à-dire à très basse température, l'extrême sensibilité de la germination des boucles à la présence d'impuretés.

La germination de boucles d'interstitiels sur des impuretés métalliques a été mis en évidence dans l'or irradié à 25°K par des ions Xénon de 300 ev [106]. Dans l'aluminium irradié aux électrons de 200 keV à 300°K, la présence de 0,1 ppm.at. d'hélium entraîne une augmentation d'un facteur quatre de la densité de boucles d'interstitiels [107].

Si le rôle des gaz sur la formation des cavités a toujours été suspecté, son effet sur la germination des boucles d'interstitiels a pendant longtemps été négligé [60].

Pour des irradiations aux électrons, l'hypothèse avancée par Makin [17] était que la présence de gaz dans la matrice en augmentant "les forces de friction" diminuait la fuite des dislocations sur les surfaces. On interprétait ainsi le fait qu'il était nécessaire d'implanter préalablement des gaz ou de laisser le métal s'oxyder pour pouvoir créer des cavités au cours d'une irradiation aux électrons. Si l'influence des gaz sur la mobilité des dislocations ne peut être négligé [108], un effet beaucoup plus important nous semble être l'augmentation de la densité des boucles avec la teneur en gaz du matériau pour des conditions d'irradiation données. Nous reviendrons plus en détail sur ce point au paragraphe 1.4.

1.1.2 - Le rôle des dislocations dans la germination des cavités

Quel que soit le mode d'irradiation, nous avons observé que les cavités se formaient toujours au voisinage des lignes ou des boucles de dislocations. Des observations analogues ont été faites dans le nickel irradié aux électrons [12] et dans l'aluminium irradié aux neutrons [19]. Dans le cuivre irradié aux neutrons Brimhall et Kissinger [86] trouvent que la formation des cavités et des boucles d'interstitiels est simultanée mais qu'il n'y a pas de corrélation entre les deux. Pourtant, dans leur publication, sur la seule micrographie montrant clairement la présence

simultanée de boucles et de cavités, la corrélation est évidente. Nous avons observé que dans les lames épaisses de cuivre brut ayant subi 5 minutes d'irradiation et ayant été amincies pour l'observation en microscopie électronique, les boucles d'interstitiels n'étaient présentes que dans des zones d'épaisseur supérieure à 1000 Å où 1500 Å. Pour des épaisseurs supérieures à environ 2500 Å, les cavités n'étaient plus visibles. En se basant sur les densités de cavités données par Brimhall et Kissinger on trouve que l'épaisseur des plages sur lesquelles leurs micrographies ont été prises est d'environ 1000 Å. D'après nos observations, la plupart des boucles auraient donc pu fuir par les surfaces pendant la préparation des lames. L'irradiation d'échantillons massifs n'affranchit donc pas de la prise de certaines précautions pendant l'observation des lames minces en microscopie électronique.

1.2 - LA CROISSANCE DES CAVITES

Nous avons vu que deux types de modèles ont été proposés pour décrire la croissance des cavités.

- Croissance contrôlée par la diffusion [32] on a alors :

$$\frac{dr}{dt} = \frac{1}{r} u$$

avec $u = D_1 (C_1 - C_1^0) - D_i (C_i - C_i^0)$

La rayon d'une cavité varie donc comme la racine carrée du temps.

- Croissance contrôlée par l'absorption des défauts à la surface de la cavité (Bullough [42])

$$\frac{dr}{dt} = \frac{1}{b} [D_1 (C'_1 - C_1^0) - D_i (C'_i - C_i^0)]$$

C'_1 et C'_i sont les concentrations en défauts au voisinage de la cavité, et b une largeur dont la valeur est de l'ordre d'une distance interatomique. Dans ce modèle, le volume total est divisé en un certain nombre de sphères de rayon R contenant chacune une cavité. On a $R = 0,68 d^{-1/3}$, où d est la densité de cavités. On trouve que le rayon de la cavité suit toujours une loi du type $r \propto t^\alpha$. α varie dans le même sens que $\frac{\rho_d}{d}$ où ρ_d est la densité de lignes de dislocation. Il est compris entre 0,25 et 1 et sera égal à 1/2 si $\rho_d R^2 > 1$ et $\rho_d r_v^2 < 1$ (r_v est le rayon de la cavité). Ces deux inégalités sont toujours vérifiées pour nos expériences quelles que soit la dose d'irradiation.

Les deux modèles prévoient donc, pour toutes les expériences que nous avons réalisées, une variation du rayon des cavités en $t^{1/2}$.

1.2.1 - Irradiations aux ions

Faibles doses (< 3 d.p.a.)

On trouve expérimentalement une variation du rayon des cavités en fonction du temps de la forme $r \propto t^\alpha$ avec $\alpha \approx \frac{1}{2}$. On peut donc théoriquement calculer la valeur du paramètre de croissance u en utilisant la relation $r = \sqrt{2 u t}$. On obtient :

$$u = 6 \times 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{s}$$

La résolution par une méthode numérique des équations de bilan permet d'obtenir les valeurs théoriques des concentrations lacunaires C_1 et du paramètre de croissance u dans une lame mince. Le principe de la méthode est détaillé dans l'annexe n°III. Les figures 39 et 40 représentent les variations de C_1 et de u en fonction de la pénétration et de l'épaisseur des lames. La figure 41 représente les variations des maxima de C_1 et de u en fonction de la densité de dislocations. On voit que les valeurs maximales de u prévues par le modèle sont inférieures d'un facteur 60 aux valeurs mesurées.

La simulation à l'ordinateur par la méthode de Monte Carlo [58] a montré que la croissance des cavités est plus rapide quand celles-ci se trouvent au voisinage des dislocations que lorsqu'elles en sont éloignées. Les expériences de simulation ont été réalisées pour l'aluminium irradié aux neutrons, mais le résultat qualitatif devrait rester valable pour le cuivre irradié aux ions. Il semble donc que le paramètre de croissance u n'a pas une valeur uniforme dans toute la lame et présente un maximum au voisinage des dislocations.

Le modèle décrit en annexe III calcule quant à lui une valeur moyenne de u . Ceci explique peut-être le désaccord entre les valeurs qu'en donne ce modèle et celles obtenues expérimentalement.

Fortes doses (> 3 d.p.a.)

Le diamètre moyen des cavités varie linéairement avec le temps. Bullough [42] trouve une variation du même type, mais dans le cas où $\rho_d r_v^2 > 1$. Par exemple après 3 heures d'irradiation on a $\rho_d r_v^2 = 0,3$. L'apparent accord qualitatif entre nos expériences et la description qu'en donne ce modèle ne semble donc être que fortuit. En fait, la variation linéaire du diamètre moyen observé expérimentalement est due à une

combinaison de croissance et de coalescence des cavités.

1.2.2 - Irradiations aux électrons

Pour des irradiations réalisées au flux Φ' , on trouve à 300°C et à 344°C une variation du diamètre moyen des cavités en t^α avec $\alpha \approx 0,4$. Ceci est une valeur moyenne, car individuellement les cavités ne suivent pas toujours cette loi. Pour des cavités isolées α est voisin de 1/2. Pour des cavités proches les unes des autres et qui vont éventuellement coalescer, α varie au cours du temps : il est voisin de 1/2 pour les faibles doses et peut devenir nul quelques temps avant que la coalescence ne s'effectue. Nous n'avons pas observé de cavité dont le diamètre moyen diminuait. La coalescence a lieu quand les cavités viennent directement en contact et ne se fait pas par un mécanisme d'Oswald Ripening*.

La croissance des cavités dépend donc de leur environnement. En particulier, la croissance de cavités isolées est plus rapide que celle de cavités proches les unes des autres. Si l'on suppose que la densité de dislocations est la même dans les deux cas, cette observation serait en accord qualitatif avec le modèle de Bullough car, dans ce cas, pour une cavité isolée le rapport $\frac{\rho_d}{d}$ est plus grand que pour des cavités groupées. En fait, on trouve expérimentalement que les variations locales de la densité de cavités suivent de très près les variations de la densité de dislocations. Donc, là encore l'accord est fortuit puisque les expressions analytiques données par le modèle sont valable uniquement dans le cas où la croissance d'une cavité n'est pas affectée par la présence des cavités voisines; c'est-à-dire quand le rayon de la cavité est très inférieur à celui de la cellule le contenant.

Certains auteurs trouvent que le gonflement se sature pour de très fortes doses [60, 61, 62]. Nous n'avons jamais observé, ne serait-ce que l'amorce d'une saturation. Pour des expériences d'irradiation aux électrons, L. Thomas [63] a montré que cet effet provenait de l'utilisation d'échantillons trop minces et qu'il n'était pas observé dans des lames d'épaisseur adéquate. Le doute subsiste donc sur l'existence d'une saturation du gonflement.

* L'Oswald Ripening est le transport des lacunes d'une cavité de petite taille vers une cavité de taille supérieure. Ce transport s'effectuant le long de la dislocation reliant les deux cavités

1.3 - INFLUENCE DES PARAMETRES DE L'IRRADIATION SUR LE GONFLEMENT

1.3.1 - Influence de la température

Tous les modèles théoriques prévoient l'existence d'un maximum de gonflement. Il est dû à la présence d'un maximum dans la variation du terme de croissance u en fonction de la température. La réduction du gonflement aux basses températures est interprétée comme étant due à la prédominance du terme de recombinaison dans les équations de bilan. La réduction à haute température serait due à des sursaturations lacunaires trop faibles. Les expériences réalisées sur des échantillons dégazés ou implantés en gaz ont clairement montré, que ce soit aux ions ou aux électrons, que la limite supérieure du gonflement pour un flux donné est décalée vers les hautes températures quand la concentration en gaz augmente. Cette limite est donc principalement due à des problèmes de germination des défauts.

Pour une irradiation donnée la température pour laquelle le gonflement est maximum est également décalée vers les hautes températures quand la teneur en gaz du matériau augmente. On ne peut donc parler de valeur absolue de la position du pic de gonflement sans préciser la concentration en gaz des échantillons.

Pour connaître l'effet d'un gaz implanté sur le gonflement il faut donc avoir étudié tout le domaine de températures dans lequel les cavités se forment. On trouve assez souvent, dans la littérature cette affirmation qu'une augmentation de la teneur en gaz du matériau se traduit par une augmentation de la densité de cavités mais que le gonflement reste inchangé [19 , 9] ou même qu'il diminue [24]. Or, toutes ces expériences ont été faites à des températures inférieures à celle du maximum de gonflement obtenue pour le métal brut. D'après nos expériences, c'est justement le domaine pour lequel l'effet sera nul ou tout au moins peu sensible. Les conclusions tirées par ces auteurs nous semblent donc erronées.

1.3.2 - Influence du flux instantané

Une bonne connaissance de cet effet est indispensable pour pouvoir comparer les différents types d'irradiation entre eux.

La théorie de germination et de croissance homogène donne l'explication suivante pour le déplacement du pic de gonflement vers les hautes températures quand le flux instantané augmente. A basse température, le terme de recombinaison prédomine dans les équations de bilan; il augmente avec le flux instantané puisqu'il est directement proportionnel aux

TABLEAU XI

Matériau	Irradiation	Flux instantané (dpa/s)	Dose totale (dpa)	Domaine de température du gonflement (°C)	Température du maximum de gonflement (°C)	Valeur du gonflement maximum (%)	Densité de cavités ⁻³ (cm ¹³)
CUIVRE BRUT	Ions cuivre de 500 Kev	6,1 x 10 ⁻⁴	6,3	380 - 480	450	3,2	8 x 10 ¹³
		6,1 x 10 ⁻³	63	420 - 550	500	9	2 x 10 ¹³
	Neutrons	5,8 x 10 ⁻⁷	≈ 1	200 - 550	360	0,32	10 ¹³
	Electrons 1 Mev	1,3 x 10 ⁻³	4,7	200 - 550	≈500	≈6	7,7 x 10 ¹³
CUIVRE DÉGAZÉ	Electrons 1 Mev	1,3 x 10 ⁻³	14	200 - 420	360	3	2 x 10 ¹³

concentrations en défauts. A dose constante, le nombre de défauts qui peuvent précipiter diminue donc quand le flux instantané augmente.

Le tableau n°XI résume nos résultats et ceux obtenus par M.Labbé et J.P.Poirier [23] en irradiant aux neutrons du cuivre appartenant au même lot que celui que nous avons utilisé. Pour toutes ces irradiations, le nombre de déplacements par atome a été calculé en prenant un seuil de déplacement de 19 eV. On voit qu'il est pratiquement impossible de trouver une relation exprimant le gonflement maximum en fonction de la dose d'irradiation en se servant des valeurs obtenues avec les différents modes d'irradiation. Il semble qu'on ne peut prévoir l'augmentation de volume qu'atteindra un métal pur irradié après avoir subi de très fortes doses de neutrons en simulant ces doses par irradiation aux ions ou aux électrons.

Il est intéressant de noter, quand bien même cela est absolument fortuit, que la position en température du maximum de gonflement et la densité de cavités sont voisins pour l'irradiation aux neutrons dans le cuivre brut et aux électrons dans le cuivre dégazé. Par contre, ce maximum est décalé vers les hautes températures pour le cuivre brut irradié aux électrons. Une augmentation du flux instantané ou une augmentation de la concentration en gaz des échantillons ont donc le même effet sur la position en température du maximum de gonflement. Ceci montre bien que là encore, c'est la germination des défauts qui contrôle les phénomènes *.

Nous avons observé que pour des irradiation aux ions à temps constant, c'est-à-dire avec des doses totales qui sont dans le rapport des flux instantanés, la limite inférieure du gonflement est décalée vers les hautes températures quand le flux instantané augmente. Cette observation ne peut s'expliquer, ni à l'aide des modèles homogènes, ni au moyen des informations que nous avons déjà pu rassembler sur les conditions de germination des cavités. Nous reviendrons sur ce point très important dans la deuxième partie de ce chapitre.

* Si l'on compare entre elles les différentes irradiations qui donnent à peu près la même densité de cavités au maximum de gonflement et si l'on suppose que $\frac{\Delta V}{V}$ varie linéairement avec la dose, on s'aperçoit que le rendement de l'irradiation défini par la relation $\frac{\Delta V}{V} / \text{dose en d.p.a.}$ diminue quand le flux instantané augmente. Il est donc possible que les prévisions des modèles homogènes soient exactes mais uniquement si le taux de germination est constant.

1.4 - INFLUENCE DE LA NATURE DU GAZ SUR LE GONFLEMENT

Les expériences réalisées sur du cuivre brut ont montré que les cavités germaient au voisinage des boucles interstitielles et qu'en moyenne une boucle permettait la formation de une ou deux cavités (Cf paragraphe IV.5). Pour des irradiations à 450°C et au-dessus et dans les cas où la densité de cavités est supérieure à $10^{13}/\text{cm}^3$ nous n'avons jamais observé de boucles lacunaires qui pourraient être attribuées à la précipitation des lacunes (nous reviendrons sur ce point au paragraphe n°5). Les lignes de dislocations ont donc essentiellement pour origine des boucles d'interstitiels. D'autre part, le rapport entre la densité de cavités et la densité de lignes de dislocations est assez souvent compris entre 1 et 2×10^4 . Hartbottle et Norris [16] trouvent des valeurs analogues pour du nickel irradié aux électrons de 1 Mev. La densité de lignes de dislocations peut donc être prise comme une mesure indirecte de la densité de boucles d'interstitiels que l'on crée au cours de l'irradiation.

Toutes les expériences sur l'influence de la nature du gaz ont été faites aux ions pour le flux Φ , pendant 3 heures et à 450°C. Pour l'ium l'hélium et l'oxygène, on trouve que :

- la densité de dislocations varie linéairement avec la concentration en gaz aussitôt que celle-ci est supérieure à $\approx 5 \text{ ppm.at.}$ [cf.IV.4].*
- la densité de cavités est constante pour l'oxygène. Pour l'hélium elle croît tout d'abord avec la concentration en gaz puis décroît pour les fortes teneurs.

Cette dernière observation peut sans doute s'expliquer par des interactions entre les atomes de gaz dissous et les dislocations.

On sait que ces interactions sont fortes [108] et du même ordre de grandeur que celles des interstitiels avec les dislocations. Un gaz insoluble aura tendance à précipiter et restera donc piégé dans les dislocations. En effet, le système cherche à atteindre un équilibre où la concentration de gaz dissous est nulle. Si l'on suppose que les dislocations sont des puits parfaits le temps mis pour atteindre cet équilibre dépendra du coefficient de diffusion du gaz et de la distance moyenne entre dislocations. Il diminue quand la densité de dislocations augmente.

* D'après les calculs basés sur la cinétique chimique [104] on s'attendrait à ce que la densité de dislocations varie comme la racine carrée de la concentration.

Dans le cas d'un gaz soluble, la concentration d'équilibre en atomes libres ne sera pas nulle et il n'est donc pas surprenant dans ce cas de trouver une densité de cavités à peu près constante quelle que soit la teneur en gaz implanté.

Si l'on s'en tient à cette série d'expériences, il semblerait que plus un gaz diffuse vite dans la matrice plus il est efficace à germer des amas de défauts (on ne crée, en effet, pas de cavités avec le krypton qui diffuse lentement). Mais il serait hardi de conclure pour deux raisons :

- Les mesures des coefficients de diffusion des gaz dans les métaux sont imprécises. La dispersion des valeurs que l'on peut trouver dans la littérature reflète bien cet état de fait.

- L'efficacité d'un gaz n'est pas uniquement fonction de son coefficient de diffusion. En particulier, l'énergie de liaison interstitiel-atome de gaz est un paramètre important. K. Farrell [64] par exemple, a trouvé, que dans l'aluminium, l'hydrogène est nettement moins efficace que l'hélium. Pourtant, dans une matrice d'aluminium, l'hydrogène diffuse beaucoup plus vite que l'hélium.

1.5 - COMPARAISON ENTRE LAMES MINCES ET LAMES EPAISSES

Cette comparaison n'est évidemment possible que pour des irradiations aux ions. Le modèle décrit dans l'annexe III prévoit que l'effet de l'épaisseur de la lame est peu sensible aussitôt que celle-ci est supérieure à environ 4000Å. Pour les lames minces irradiées, toutes nos mesures ont été effectuées dans des zones dont l'épaisseur était voisine de cette valeur. On s'attendrait donc à n'observer que des différences très faibles, entre lames minces et lames épaisses pour les mêmes conditions d'irradiation. Or, dans le cuivre brut, pour une irradiation de 3 heures à 450°C au flux Φ , la densité de cavités est trois fois plus forte dans la lame épaisse que dans la lame mince.

On peut proposer pour cette observation deux interprétations ne s'excluant pas mutuellement :

- Dans les premiers temps de l'irradiation, du fait de l'existence de forces images, la fuite par les surfaces des boucles d'interstitiels serait plus importante dans la lame mince que dans la lame épaisse. Or nous avons vu que la densité de cavités est directement reliée à la densité de boucles.

- Les atomes de gaz servent à la fois à la germination des boucles et des cavités et une grande partie d'entre eux reste piégés dans les amas qu'ils ont aidé à germer. Si le nombre total d'atomes de gaz disponibles est constant, le nombre d'atomes libres va diminuer au fur et à mesure que les

amas se forment. La germination s'arrêtera quand il n'y en aura plus ou quand leur concentration sera inférieure à une certaine valeur. C'est le cas de la lame mince car les défauts se forment dans toute son épaisseur. Par contre, dans la lame épaisse, l'irradiation n'intéresse qu'un volume faible par rapport au volume total. Des atomes de gaz peuvent donc diffuser des parties non irradiées de la lame vers les parties irradiées. Cela reviendrait en fait à une irradiation avec production de gaz. La germination s'arrêtera quand les atomes de gaz auront plus de chance d'aller sur les dislocations ou les cavités existantes que vers des germes éventuels.

Pour le cuivre recuit nous avons observé une densité moyenne de boucles lacunaires dans les lames minces mais seulement quelques unes de petites tailles dans les lames épaisses. Pourtant, à l'état stationnaire, le paramètre de croissance u est identiquement nul si la densité de dislocations et de cavités est nulle (voir Annexe III). Aucun amas ne devrait croître. Il est donc possible que les surfaces aient une légère attraction préférentielle pour les interstitiels.

Nous avons déjà signalé que l'observation, en microscopie électronique, de lames trop minces pouvait conduire à des résultats erronés même si les irradiations ont été effectuées sur des échantillons massifs. En particulier, si la taille moyenne des cavités contenues dans le métal est supérieure à l'épaisseur des plages observées, ces cavités apparaîtront comme des trous qui pourront être interprétés comme un effet du polissage. Il semble néanmoins que la plupart des expérimentateurs ont évité cet écueil [9]. Nous avons également observé que le polissage par jet avait pour effet d'augmenter le diamètre des cavités qui intersectaient la face polie. Tous nos échantillons préparés de cette manière ont subi après coup un léger polissage par la méthode classique qui ne présente pas cet inconvénient. Ces quelques exemples ne sont donnés ici que pour bien montrer que certaines précautions doivent être prises non seulement dans l'interprétation des phénomènes lorsque les irradiations sont effectuées sur des lames minces mais également pendant l'observation en microscopie électronique d'échantillons préparés à partir de lames épaisses irradiées.

2 - MÉCANISME DE GERMINATION DES CAVITÉS

On peut tout de suite éliminer certains modes de germination qui, tout en étant possibles pour d'autres matériaux et d'autres conditions d'irradiation sont impossibles ou tout au moins fortement improbables dans le cuivre pur pour nos conditions d'expériences:

- Germination sur des sites préexistants.
- Germination sur des microbulles de gaz: en effet, l'on forme des cavités aux ions et aux électrons dans des échantillons contenant des concentrations de gaz bien inférieures à leur limite de solubilité.

On peut également éliminer comme seuls mécanismes possibles ceux qui font intervenir les cascades de déplacement puisque l'on forme des cavités au cours d'une irradiation aux électrons qui ne produit que des paires de Frenkel isolées.

Nous avons vu que trois facteurs influaient sur la germination des cavités : le taux de production de défauts, les gaz, et la présence ou non de dislocations. Nous avons également signalé que pour des irradiations aux ions la limite inférieure du gonflement est décalée vers les hautes températures quand le flux instantané augmente alors que ce phénomène n'a pas lieu pour des irradiations aux électrons. On peut donc penser que les cascades jouent également un rôle dans la germination.

Dans cette partie, nous nous proposons donc d'essayer de répondre aux questions suivantes :

- Pourquoi les cavités germent-elles au voisinage des dislocations ?
- Par quel mécanisme les gaz aident-ils à la germination ?
- Quel est le rôle des cascades de déplacement ?

2.1 - CONCENTRATION DES DÉFAUTS AU VOISINAGE DE LA DISLOCATION

La présence des cavités près des dislocations peut s'expliquer par l'existence d'un maximum de la concentration en lacunes et du paramètre de croissance u au voisinage de celles-ci. Les profils des concentrations en défauts s'obtiennent par la résolution du système d'équations de diffusion autour d'une dislocation :

$$(1) \quad \begin{aligned} \frac{\partial C_1}{\partial t} &= G - \alpha C_1 C_i + D_1 \operatorname{div} (\operatorname{grad} C_1) \\ \frac{\partial C_i}{\partial t} &= G - \alpha C_1 C_i + D_i \operatorname{div} \left(\operatorname{grad} C_i + C_i \frac{\operatorname{grad} V}{kT} \right) \end{aligned}$$

V est le potentiel d'interaction entre l'interstitiel et la dislocation.

G. Brébec a résolu numériquement le système (1) dans le cas de l'aluminium en prenant un potentiel de la forme $\frac{A \sin \theta}{r}$ afin de tenir compte des régions en tension et en compression autour de la dislocation. Il a trouvé [19] qu'à l'état stationnaire les variations des sursaturations en défauts sont des fonctions monotones de la distance à la dislocation.

La résolution du même problème par la simulation à l'ordinateur [58] a permis de montrer que pendant l'état transitoire la sursaturation lacunaire présentait un maximum au voisinage de la dislocation. Ce maximum semble même subsister à l'état stationnaire. Des évolutions similaires ont été trouvées par Rothman [109] pour la sursaturation lacunaire pendant l'état transitoire au voisinage de la surface d'une lame mince irradiée. Il est intéressant de noter que loin des surfaces cet auteur trouve que pendant l'état transitoire la concentration en lacunes augmente avec le temps et la concentration en interstitiels diminue. La germination et la croissance des boucles d'interstitiels serait donc favorisée pendant les premiers temps de l'irradiation tout au moins dans l'hypothèse d'une répartition homogène de défauts.

La germination et la croissance des cavités sont donc favorisées au voisinage des dislocations du fait de la présence d'un maximum de la sursaturation en lacunes.

2.2 - LE ROLE DES GAZ

Nous avons vu que pour avoir une action sur la germination des cavités, les gaz doivent être libres et mobiles. Un germe de cavité résulte donc, soit de l'agglomération simultanée de lacunes et d'atomes de gaz soit d'un amas de lacunes stabilisé par des atomes de gaz l'ayant atteint par diffusion.

2.3 - LE ROLE DES CASCADES DANS LA GERMINATION DES DÉFAUTS

La différence essentielle entre des irradiations aux ions et aux électrons est que dans le second cas on crée des paires lacune-interstitiel proche alors que dans le premier cas les interstitiels sont éjectés loin du centre de la cascade qui est une région riche en lacunes. Nos expériences montrent bien que la distance entre les lacunes et les interstitiels créés par l'irradiation est un paramètre important pour la création des amas de défauts :

- Dans le cuivre brut irradié à 450°C on crée une forte densité de boucles

d'interstitiels, en irradiant aux ions alors que l'on n'en crée que quelques unes en irradiant aux électrons, et ceci pour des taux de production de défauts voisins.

Une irradiation aux électrons au flux Φ' ne produit de défauts dans le cuivre dégazé que si la déviation à l'angle de Bragg est négative. C'est-à-dire quand on est en position d'absorption anormale ($s > 0$ correspondant à la transmission anormale). Des calculs théoriques montrent que cette augmentation de l'absorption a pour conséquence une multiplication du taux de production de défauts obtenu avec $s > 0$ par un facteur au plus égal à 2,6 [66, 67, 68]. Théoriquement on ne devrait donc pas créer de défauts en irradiant à $s < 0$ avec un flux inférieur à $\frac{\Phi'}{3}$. Quand la déviation à l'angle de Bragg est négative, l'orientation du cristal par rapport au faisceau est telle que l'on peut obtenir des collisions focalisées. Il est donc logique d'attribuer à cette augmentation de la distance entre la lacune et l'interstitiel de la paire de Frenkel le fait que l'on crée des amas en irradiant à $s < 0$ avec le flux $\Phi'/10$.

En toute logique une étude théorique de la formation des amas de défauts au cours d'une irradiation aux ions devrait être traitée par la simulation à l'ordinateur en utilisant les cascades données par le programme Marlowe [38]. Malheureusement la répartition spatiale des défauts dans la cascade donnée par ce programme sont contestés [58, 59]. D'après des expériences récentes de simulation réalisées par J.M. Lanore [58], sur la formation des boucles d'interstitiels et des amas de lacunes dans l'aluminium irradié aux neutrons, il semble que la distribution spatiale des interstitiels dans la cascade serait plus étalée que celle donnée par le programme Marlowe. D. Seidman et K. Wilson [59] expliquent ce désaccord par le fait que le programme ne rend pas compte des focalisations. Thomas et Venable [106] ont montré que les interstitiels étaient mobiles même à très basse température et donnent une énergie de migration de 0,06 eV pour les interstitiels dans l'or. Ces derniers auteurs contestent l'existence de collisions focalisées à longue distance.

En l'absence de calculs théoriques réalistes, on peut quand même émettre certaines hypothèses sur le rôle éventuel des cascades. Les cascades ont pour effet de produire localement de fortes sursaturations en défauts de même type. La germination des amas se trouve donc être favorisée à l'endroit où se crée la pointe de déplacement. Nous avons vu qu'on ne formait pas de boucles d'interstitiels au cours d'une irradiation aux ions à 450°C si le matériau est bien dégazé. Il est donc probable que ces boucles

ne se forment pas "in situ" dans la cascade à cette température. La formation in situ dans les cascades de déplacement de boucles lacunaires a été mis en évidence dans l'or [70] et le cuivre [71] irradiés à 20°C par des ions de même nature ainsi que dans le cuivre irradié aux neutrons à la même température [110]. Il semble donc qu'il existe une température en dessous de laquelle quel que soit le flux instantané les lacunes constituant le coeur de la cascade vont précipiter en boucles. Au-dessus de cette température cette précipitation en boucles va dépendre du flux instantané : elle sera possible si un nombre suffisant de lacunes arrivent à joindre l'amas avant que celui-ci ne soit stabilisé par des atomes de gaz ou que les lacunes le constituant ne se soit dispersées dans la matrice.

A une température donnée la probabilité de former des boucles lacunaires augmenterait donc avec le flux instantané. Autrement dit la constitution d'un germe de cavité résulterait d'une compétition entre la vitesse de croissance des amas et de la possibilité pour des atomes de gaz de les atteindre par diffusion afin de les stabiliser. Ce mécanisme proposé par Y. Adda [31] et que nous avons repris à notre compte [73] pour expliquer les effets observés à 400°C pour le flux Φ et le flux $\Phi/10$ pour des irradiations à temps constant, pourrait très bien être très général. En particulier on pourrait expliquer ainsi le fait que l'on arrive à créer des cavités aux électrons pour des températures inférieures à 350°C et que l'on n'arrive pas à en créer aux ions. Aux électrons, le germe de cavité résulte de l'agglomération de lacunes une par une et d'atomes de gaz alors qu'aux ions dans ce domaine de températures la probabilité pour que les lacunes précipitent en boucles est très forte. Dans le premier cas des atomes de gaz auraient donc le temps de diffuser vers les amas pour les stabiliser, cette stabilisation des amas ne pourrait avoir lieu dans le second cas.

On pourrait penser, comme certains auteurs [57], que les boucles lacunaires une fois formées se recuisent, et que les lacunes émises vont participer à la germination et à la croissance des cavités. Mais cet argument est contestable. En effet, les dislocations étant des puits préférentiels pour les interstitiels, les boucles lacunaires ont plus de chance de se recuire par absorption d'interstitiels que par émission de lacunes. Cela dépendra, en fait, de la valeur du paramètre de croissance u au voisinage de la boucle. Pour des valeurs croissantes de u la boucle lacunaire peut, soit se recuire par absorption d'interstitiels, soit rester stable, soit croître. Les lacunes ayant précipité en boucles vont donc se recombinaison avec les interstitiels ou rester gelées sur place.

2.4 - RESUME DU CHAPITRE VI

Pour nous résumer, on peut donc dire que dans tous les cas la constitution d'un germe de cavités résulte d'une compétition entre la vitesse d'agglomération des lacunes et de la possibilité pour des atomes de gaz de les atteindre par diffusion afin de les stabiliser avant qu'ils ne s'effondrent pour former des boucles. La différence entre des irradiations aux ions et aux électrons provient du fait que dans le premier cas on crée localement de fortes sursaturations en défauts d'un seul type et que dans le **second** cas la répartition est homogène. Cette formation du germe de cavités se trouve être favorisée au voisinage d'un puits absorbant préférentiellement les interstitiels.

CONCLUSION

Cette étude nous a permis de dégager certains points essentiels pour la compréhension des processus qui régissent le gonflement des métaux purs.

1) Nous avons pu montrer que la germination des boucles d'interstitiels et des cavités est hétérogène dans le domaine de températures étudié. Les gaz dissous dans le matériau sont les agents responsables de cette germination. Les boucles d'interstitiels en croissant forment un réseau de dislocations. Donc, les gaz dissous servent à la fois à la formation des cavités et du réseau de dislocations.

2) Nous avons étudié l'influence de la nature du gaz sur la formation des amas de défauts. De cette étude il ressort que:

- Pour pouvoir aider à la germination, le gaz doit-être mobile.
- Il semble qu'un gaz insoluble soit plus efficace qu'un gaz soluble.
- Le nombre d'atomes de gaz participant à la stabilisation des amas de lacunes n'est qu'une fraction de la quantité totale de gaz contenue dans l'échantillon. L'autre fraction est piégée par les dislocations.

3) Des expériences d'irradiations à faible dose ont révélé que la formation des cavités a toujours lieu au voisinage des lignes ou des boucles de dislocations.

4) La température pour laquelle le gonflement est maximum est fonction à la fois du flux instantané et de la concentration en gaz du matériau. Elle se déplace vers les hautes températures quand l'une ou l'autre de ces deux quantités augmente.

5) Pour des irradiations aux ions la température correspondant à la limite inférieure du domaine de gonflement se déplace vers les hautes températures quand le flux instantané augmente. Ceci n'est pas vrai pour des irradiations aux électrons. Ainsi, pour des taux de production de défauts comparables à ceux des ions, on forme des cavités aux électrons pour des températures qui sont en dessous de la limite inférieure du domaine des ions.

6) Les observations 1 et 2 montrent clairement que, quel que soit le mode d'irradiation, un germe de cavité est constitué d'un amas de lacunes stabilisé par un ou plusieurs atomes de gaz.

Les observations 4 et 5 suggèrent que la formation de ce germe

résulte d'une compétition entre la vitesse d'agglomération des lacunes et de la possibilité pour des atomes de gaz de les atteindre par diffusion.

Ce mécanisme que nous pensons être très général explique fort bien les différences observées entre les irradiations aux ions et aux électrons :

- L'irradiation aux ions crée localement de fortes sursaturations en défauts. En particulier, le centre de la cascade de déplacement est une zone riche en lacunes. La précipitation de ces lacunes en boucles va dépendre à la fois de la température et des sursaturations lacunaires moyennes dans la lame. Pour une température donnée, il existe donc un flux instantané critique au dessus duquel la précipitation en boucles sera favorisée.

- Ce phénomène ne peut avoir lieu pour des irradiations aux électrons puisque dans ce cas la répartition des défauts créés est homogène.

7) Vu le manque d'informations dont nous disposons sur la répartition réelle des défauts dans la cascade, nous n'avons pu vérifier cette hypothèse à l'aide d'une étude théorique.

Il nous semble que des études expérimentales systématiques de l'effet du flux instantané pourraient apporter des informations sur les mécanismes de germination des amas et permettraient de vérifier la validité du mécanisme proposé.

8) Les modèles basés sur la cinétique chimique se trouvent être en défaut car il ne tiennent pas compte des dissymétries dans la création et l'élimination des lacunes et des interstitiels. Par contre, la simulation à l'ordinateur par la méthode de Monte Carlo semble être assez prometteuse.

Les irradiations aux ions et aux électrons sont donc d'excellents moyens d'étude des phénomènes fondamentaux. Mais on ne peut pour l'instant prévoir, à l'aide de ces irradiations, l'augmentation de volume d'un matériau irradié aux neutrons à forte dose.

RÉFÉRENCES

1. C. CAWTHORNE, E.J. FULTON
Nature, 216, 576 (1967)
2. S.D. HARKNESS, C.Y. LI
Radiations damage in reactor materials, I.A.E.A. Vienne (1969)
Vol II, p. 189
3. *Radiation - Induced Voids in Metals*, Albany, n.Y. USA (1971)
Symposium Series
4. *Voids Formed by Irradiation of Reactor Materials*, Reading, U.K.,
(1971) *British Nuclear Energy Society*
5. D.I.R. NORRIS
Rad. Effects 14, 1, (1972)
Rad. Effects 15, 1, (1972)
6. E.E. BLOOM
dans Réf. 3, p. 1
7. I.I. BRAMMAN, K.Q. BAGLEY, C. CAWTHORNE, J.E. FULTON
dans Réf. 3, p. 125
8. J.L. STRAALSUND, H.R. BRAGER, J.J. HOLMES
dans Réf. 3, p. 142
9. W.K. APPLEBY, D.W. SANDUSKY, U.E. WOLFF
dans Réf. 3, p. 156
10. J.J. LAIDLER
dans Réf. 3, p. 174
11. S.D. HARKNESS, B.J. KESTEL, S.G. Mc DONALD
J.M.N., 46, 159, (1973)
12. D.I.R. NORRIS
dans Réf. 4, p. 247
13. R.S. NELSON, J.A. HUDSON, D.J. MAZEY, G.P. WALTERS,
T.M. WILLIAMS
dans Réf. 3, p. 430
14. F.A. GARNER, L.E. THOMAS
dans Symposium on the Effects of Radiation on Structural Materials
Los Angeles, U.S.A., (1972)

15. D.I.R. NORRIS
Phil. Mag., 22, 1273, (1970)
16. J.E. HARBOTTLE, D.I.R. NORRIS
Fifth European Congress on Electron Microscopy, University of Manchester, (1972)
17. M.J. MAKIN
Rapport A.E.R.E. - M 2494
18. H.E. KISSINGER
J. Nucl. Mat., 28, 118, (1968)
19. A. RISBET
Thèse d'Université, Orsay, 1974
20. C. CAWTHORNE, E.J. FULTON
dans Réf. 4, p. 1, 27, 35
21. T.T. CLAUDSON, J.J. HOLMES, J.L. STRAALSUND, H.R. BRAGER
dans Radiation Damage in Reactor Materials, Vol 2, Vienne (1969) p.165
22. N.H. PACKAN
dans Réf. 4, p. 71
23. M. LABBE, J.P. POIRIER
J.N.M., 46, 86, (1973)
24. J. DELAPLACE, N. AZAM, L. LE NAOUR, M. LOTT, C. FICHE
J.N.M., 47, 278, (1973)
25. I.M. TORRENS, M.T. ROBINSON, M.J. NORGETT
Rapport C.E.A. - R - 4389
26. G.H. KINCHIN, R.S. PEASE
Rep. Progs. Phys. 18, 1, (1955)
27. R.S. NELSON
A.E.R.E., R 6092, (1969)
28. M.J. NORGETT
Rapport A.E.R.E., (1971)
29. W.A. Mc KINLEY, M. FESHBACH
Phys. Rev., 74, 12, (1948)
30. J.O. STIEGLER
dans Réf. 3, p. 292
31. Y. ADDA
dans Réf. 3, p. 31

32. M. GOMOLINSKI, G. BREBEC
J.N.M. 43 , 52 , (1971)
33. M. VOLMER, A. WEBER
Z. Phys. Chem. 119 , 227 (1926)
34. S.D. HARKNESS, CHE YU LI
Met. Trans. 2 , 1457 , (1971)
35. K.C. RUSSELL
Acta Met., 19 , 753 , (1971)
36. J.J. BURTON
Scripta Met. 5 , 449 , (1971)
37. L. KATZ, H. WIEDERSICH
J. Chem. Phys. 55 , 1414 , (1971)
38. I.M. TORRENS, M.T. ROBINSON
dans Réf. 3, p. 739
39. J. LINDHARD, V. NIELSEN, M. SCHARFF, P.J. THOMSEN
Kgl. Danske Videnskab. Selskab, Mat. Fys. Medd. 33 (1963), n° 10
40. K. C. RUSSELL
Acta Met. 20 , 899 , (1972)
41. H. WIEDERSICH, J.J. BURTON, J.L. KATZ
à paraître dans J.N.M.
42. R. BULLOUGH, R.C. PERRIN
dans Réf. 4, p. 79
43. F.S. HAM
J. Appl. Phys. , 30 , 915 , (1959)
44. J.A. BAILEY, P.B. HIRSCH
Phil. Mag. 5 , 485 , (1960)
45. C.S. SMITH, L. GUTTMAN
Trans. Amer. Inst. Min. (Metall.) Engrs. 197 , 81
46. P.B. HIRSCH, A. HOWIE, R.B. NICHOLSON, D.W. PASHLEY,
M.J. WHELAN
Electron Microscopy of thin Crystals (Butterworths, London, 1965)
47. D.M. MAHER, B.L. EYRE
Phil. Mag. 23 , 409 , (1971)
48. D.E. RIMMER, A.H. COTTRELL
Phil. Mag. 2 , 1345 , (1957)

49. B. RUSSELL, I.J. HASTINGS
J.N.M. 17 , 30 , (1965)
50. R.L. PASTOREK, R.A. RAPP
Trans. AIME 245 , 1711 , (1969)
51. L. KATZ, M. GUINAN, R.J. BORG
Phys. Rev. 4 , 330 , (1971)
52. G. RICKERS, G. SORENSEN
Phys. Stat. Sol. 32 , 597 , (1969)
53. F. BOUILLON, J. ORSZAGH
J. Phys. Chem. Solids, 33 , 1533 , (1972)
54. C.J. BEEVERS, R.S. BARNES
Rapport A.E.R.E. R - 3589 , (1960)
55. H. UDIN
Metal Interfaces (American Society for Metals, Cleveland, Ohio, 1952)
p. 114
56. V. LEVY, P. REGNIER
Journal de Physique, Colloque C 1, supplément n°4, 31 , (1970) p.C1-159
57. B.L. EYRE, A.F. BARTLETT
J.N.M., 47 , 143 , (1973)
58. J.M. LANORE
Communication personnelle
59. D. SEIDMAN, K. WILSON
dans Defects and Defects clusters in B.C.C. Metals and their Alloys. Nuclear Metallurgy, Volume 18, Ed. by R.J. Arsenault.
60. D.I.R. NORRIS
Phys. Stat. Sol. (a), 4 , K 5 , (1971)
61. K. URBAN, M. WILKENS, A. SEEGER
dans Réf. 3 , p. 550
62. M.J. MAKIN
dans Réf. 4 , p. 269
63. L.E. THOMAS, R.M. FISHER
dans International Conference on Physical Metallurgy of Reactor Fuel Elements, Berkeley Nuclear Laboratories, (1973)
64. K. FARRELL, A. WOLFENDEN, R.T. KING
Rad. Effects, 8 , 107 , (1971)
65. M.J. MAKIN
Phil. Mag. 18 , 637 , (1968)

66. L.E. THOMAS
Rad. Effects, 5 , 183 , (1970)
67. P.A. DOYLE
Phil. Mag. 29 , 537 , (1974)
68. M.J. MAKIN
7ème Congrès International de Microscopie Electronique, Grenoble,
p. 213 , (1970)
69. L.A. BEAVAN, R.M. SCANLAN, D.N. SEIDMAN
Acta Met. 19 , 1339 , (1971)
70. T. SCHOEBER, R.W. BALUFFI, L.E. THOMAS
Rad. Effects 1 , 269 , (1969)
71. M.M. WILSON
Phil. Mag. 24 , 1023 , (1971)
72. V. LEVY
Communication personnelle
73. L. GLOWINSKI, C. FICHE, M. LOTT
J.N.M. 47 , 295 , (1973)
74. R.S. NELSON, D.J. MAZEY, J.A. HUDSON
J.N.M. 37 , 1 , (1970)
75. A. TAYLOR, S. Mc DONALD
dans Réf. 3
76. G.L. KULCINSKI, J.L. LAIDLER, D.G. DORAN
Rad. Effects, 7 , 195 , (1971)
77. D.J. MAZEY
J.N.M., 35 , 60 , (1970)
78. G.P. WALTERS
dans Réf. 4, p. 231
79. T.M. WILLIAMS
dans Réf. 4, p. 205
80. D.I.R. NORRIS
J.N.M., 40 , 66 , (1971)
81. D.I.R. NORRIS
dans Réf. 4, p. 247
82. J.T. BUSWELL
dans Réf. 4 , p. 283

83. J.L. BRIMHALL, B. MASTEL
J.N.M., 29 , 123 , (1969)
84. J.T. HARSTON, K. FARRELL
J.N.M., 40 , 235 , (1971)
85. V. LEVY, J. MATHIE, A. RISBET, R. LEVY, J.P. POIRIER
dans Réf. 4 , p. 63
86. J.L. BRIMHALL, H.E. KISSINGER
Rad. Effects, 15 , 259 , (1972)
87. M.J. MAKIN
Jernkontorets Amaler, 155 , 509 , (1971)
88. G.L. KULCINSKI, B. MASTEL, H.E. KISSINGER
Acta Met., 19 , 27 , (1971)
89. J.L. BRIMHALL, B. MASTEL
j.n.m. , 29 , 123 , (1969)- *Ibid*, 28 , 115 , (1968)
90. J.O. STIEGLER, E.E. BLOOM
Rad. Effects, 8 , 33 , (1971)
91. G.L. KULCINSKI, J.L. BRIMHALL, H.E. KISSINGER
dans Réf. 3,
92. J.Á. HUDSON, D.J. MAZEY, R.S. NELSON
dans Réf. 4, p. 213
93. G.L. KULCINSKI, J.L. BRIMHALL, H.E. KISSINGER
J.N.M., 40 , 166 , (1971)
94. D.I.R. NORRIS
J.N.M., 40 , 66 , (1971) - *Nature* , 227 , 830 , (1970)
95. K. URBAN
Phys. Stat. Sol. (a) , 3 , K 167 , (1970)
96. K. URBAN
Phys. Stat. Sol. (a) , 4 , 761 , (1971)
97. K. URBAN
dans Réf. 4, p. 275
98. J.D. ELEN
dans Réf. 4 , p. 51
99. F.W. WIFFEN
dans Réf. 3,
100. J.L. BRIMHALL, B. MASTEL
Rad. Effects, 3 , 203 , (1970)

101. B.L. EYRE, J.H. EVANS
dans Réf. 4 , p. 323
102. J.H. EVANS
Nature, 229 , 403 , (1971)
103. J.H. EVANS
Rad. Effects, 10 , 55 , (1971)
104. A. BOURRET
Rad. Effects, 5 , 27 , (1970)
105. J.M. LANORE
Communication personnelle
106. G.J. THOMAS, J.A. VENABLES
Phil. Mag., 28 , 1171 , (1973)
107. L.D. GLOWINSKI
Cornell University, Report n° 1760 COO - 3171 - 6
108. P. COMBETTE
Rapport C.E.A. - R - 4264
109. S.J. ROTHMAN, NGHI QLAM, R. SIZMANN, H. BISSWANGER
Rad. Effects, 20 , 223 , (1973)
110. M. RUHLE, F. HASSERMANN, M. RAPP
Phys. Stat. Sol., 39 , 609 , (1970)

Manuscrit reçu le 10 mars 1975

ANNEXE I

Métal	Type d'irradiation	Domaine de température étudié (°C)	Références
Aciers	Neutron	360 - 650	1, 2, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 20, 21
	Ion	450 - 700	13, 74, 75, 76, 77, 78, 79
	Electron	450 - 600	80, 81, 82, 14, 63
Al	Neutron	55 - 220	31, 19, 22, 83, 64, 84, 85
Cu	Neutron	250 - 520	31, 23, 85, 86
	Ion	350 - 550	31, 73
	Electron	100 - 400	87, 62
Ni	Neutron	260 - 640	31, 18, 88, 89, 90
	Ion	450 - 700	24, 13, 91, 92, 93
	Electron	450 - 700	24, 13, 91, 92, 93
Mo	Neutron	440 - 1200	31, 91, 98, 99, 100, 101, 57
	Ion	800 - 1000	91, 101, 102, 103
Nb	Neutron	470 - 790	31, 99, 98
	Ion	800 - 1000	91

ANNEXE II

ANALYSE CRISTALLOGRAPHIQUE DES BOUCLES DE DISLOCATION

ANALYSE CRISTALLOGRAPHIQUE DES BOUCLES DE DISLOCATION

L'analyse est basée sur les résultats des théories dynamique et cinématique de la diffraction des électrons [46]. Dans le cas d'une boucle purement coin, son caractère est entièrement déterminé par la connaissance de la direction et du sens de son vecteur de Burgers. Si la boucle n'est pas coin, il est nécessaire de connaître en plus la relation entre $\vec{n}$ et $\vec{b}$ ($\vec{n}$ normale au plan de la boucle et $\vec{b}$ son vecteur de Burgers). Nous avons utilisé les conventions suivantes (Fig. A.a et A.b)

- Le sens de $\vec{z}$, la normale au plan moyen de la lame est pris inverse de celui des électrons incidents.
- $\vec{n}$ la normale au plan de la boucle est dirigée dans le sens $\vec{z}$.
- Le sens de $\vec{b}$ est défini par la convention FS/RH.

Avec ces conventions, le produit $\vec{n} \cdot \vec{b}$ est négatif pour une boucle lacunaire et positif pour une boucle interstitielle.

La direction de $\vec{b}$ peut être déterminée sans ambiguïté à l'aide du critère d'extinction $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$ (où $\vec{g}$ est un vecteur réciproque du plan réfléchissant). L'application de ce critère nécessite l'obtention de deux plan réfléchissants pour lesquels la dislocation est invisible. Dans le cas où la famille de $\vec{b}$ possibles est connue à priori une seule extinction suffit. Le sens de $\vec{b}$ peut être trouvé en notant le changement de position de l'image de la dislocation quand le signe du produit ($\vec{g} \cdot \vec{b}$) $\vec{s}$ est inversé ($\vec{s}$ est un paramètre mesurant la déviation par rapport aux conditions de Bragg; il est positif quand l'extrémité du vecteur du réseau réciproque se situe à l'intérieur de la sphère de réflexion). Avec les conventions utilisées ce produit est négatif pour un contraste intérieur et positif dans l'autre cas.

Si la boucle n'est pas coin, il faut en plus connaître $\vec{n}$ pour pouvoir déterminer son caractère. Maher et Eyre [47] ont montré qu'il existe certaines orientations pour lesquelles les boucles peuvent être traitées comme des boucles coin. Ces orientations sont telles que $\vec{b}$ et $\vec{n}$ se trouvent à l'intérieur d'une région "sure" définie par les conditions aux limites $\vec{n} \cdot \vec{z} > 0$ et $\vec{b} \cdot \vec{n} > 0$. Pour les matériaux cubiques à faces centrées les boucles se trouvent généralement sur des plans $\{111\}$ et ont des vecteurs de Burgers du type $\frac{a}{2} \langle 110 \rangle$. L'angle entre $\vec{b}$ et $\vec{n}$ est donc de 35° . Par conséquent, si l'angle entre $\vec{b}$ et $\vec{z}$ est inférieur

à 55°, l'orientation est "sure" et la connaissance de la direction et du sens de $\vec{b}$ suffisent à déterminer le caractère de la boucle (Fig. A.c).

Pour toutes les analyses, nous avons pris $z \approx [001]$. La direction de b a été trouvée en utilisant des réflexions du type $\langle 111 \rangle$, $\langle 200 \rangle$ et $\langle 220 \rangle$. Pour déterminer le sens de $\vec{b}$, l'application du critère $(\vec{g}.\vec{b}) s$ a été faite en inversant le signe de $\vec{g}$ et en gardant $s > 0$ pour toutes les réflexions utilisées, ceci afin de s'assurer de la validité des résultats et de distinguer entre les images en contraste résiduel obtenues avec $+\vec{g}.\vec{b} = 0$ et $-\vec{g}.\vec{b} = 0$ et les images en faible contraste que l'on peut obtenir avec $+\vec{g}.\vec{b} \neq 0$ ou $-\vec{g}.\vec{b} \neq 0$.

Les figures B et C présentent un exemple de détermination. Les résultats sont consignés dans le tableau a.

TABLEAU a

Boucle	$\vec{g} . \vec{b}$			Direction de $\vec{b}$	Contraste pour $\vec{g} = [2\bar{2}0]$ $z \approx [001]$	$(\vec{g}.\vec{b})s$ pour $\vec{g} = [2\bar{2}0]$	Caractère
	$\vec{g} = [0\bar{2}0]$	$\vec{g} = [200]$	$\vec{g} = [111]$				
A, B F, H	0	$\neq 0$	$\neq 0$	$\bar{1}01$	Extérieur	> 0	$\vec{b} = 10\bar{1}$ Lacunaire
C	0	$\neq 0$	0	101	Intérieur	< 0	$\vec{b} = \bar{1}0\bar{1}$ Lacunaire
G, E	$\neq 0$	0	$\neq 0$	011	Extérieur	> 0	$\vec{b} = 0\bar{1}\bar{1}$ Lacunaire
D	$\neq 0$	0	0	0 $\bar{1}1$	Intérieur	< 0	$\vec{b} = 01\bar{1}$ Lacunaire

ANNEXE III

Les principales études théoriques de gonflement sont faites pour des irradiations uniformes de matériaux épais où l'effet des surfaces libres est complètement négligé. Dans le cas d'irradiation de lames minces de cuivre par des ions Cu^+ de 500 Kev dont le parcours moyen extrapolé est de 1500 Å il devient nécessaire d'en tenir compte.

Nous supposons les lames irradiées uniformément sur une face par un faisceau d'ions parallèles, dont le ralentissement crée à la profondeur x une densité $s = s(x)$ paires de Frenkel par atome et par unité de temps. Les équations régissant les concentrations $C_1(x)$ et $C_i(x)$ en lacunes et en interstitiels pour l'état stationnaire s'écrivent :

$$D_1 \frac{d^2 C_1}{dx^2} - k D_1 (C_1 - C_1^{\text{th}}) - \beta C_1 C_i + S + \beta C_1^{\text{th}} C_i^{\text{th}} = 0$$

$$D_i \frac{d^2 C_i}{dx^2} - \alpha K D_i (C_1 - C_i^{\text{th}}) - \beta C_1 C_i + S + \beta C_1^{\text{th}} C_i^{\text{th}} = 0$$

(1)

avec $C_1 = C_1^{\text{th}}$ et $C_i = C_i^{\text{th}}$ pour $x = 0$ et $x = b$, b étant l'épaisseur de la lame. D_1 et D_i sont les coefficients de diffusion des lacunes et des interstitiels; β est le coefficient de recombinaison. k , K et α sont deux coefficients caractérisant les captures sur puits fixes. Ici, seules les dislocations ont été prises en compte. On a :

$$k = 2 \pi \lambda / \text{Log} (r_s / r_c)$$

λ : largeur moyenne de ligne de dislocation par unité de volume; r_c : rayon de capture des dislocations; r_s : demie distance moyenne entre dislocations supposées rectilignes, $r_s = \frac{1}{2} \sqrt{\lambda}$.

α est introduit dans l'équation de bilan pour les interstitiels afin de tenir compte de l'attraction préférentielle des dislocations pour les interstitiels.

Les résultats ont été obtenus à partir des valeurs des constantes de formation et de migration des défauts, du volume de recombinaison etc consignées dans le tableau suivant :

	Lacunes	Interstitials
Energie de formation (ev)	1,03 [1]	4,2 [2]
Coefficient préexponentiel de formation	1,35 [1]	(6,7)
Energie de migration (ev)	1,06 [1]	0,12 [3]
Facteur de fréquence (s ⁻¹)	1,4 x 10 ¹⁴ [1]	(2 x 10 ¹⁴)
Volume de recombinaison Z (V at.)	(16)	16
Rayon de capture des dislocations r _c (cm)	(10 ⁻⁷)	10 ⁻⁷
Coefficient de dissymétrie, α		1,02

[1] H. Mehrer et A. Seeger, Phys. Stat. Sol. 35, 313, 1969
[2] R.A. Johnson, Thèse, Rensselaer Polyt. Inst. (1962)
[3] J.W. Corbett, R.B. Smith et R.M. Waljer, Phys. Rev. 114, 1452 (1959)

Les valeurs placées entre parenthèses sont de simples estimations.

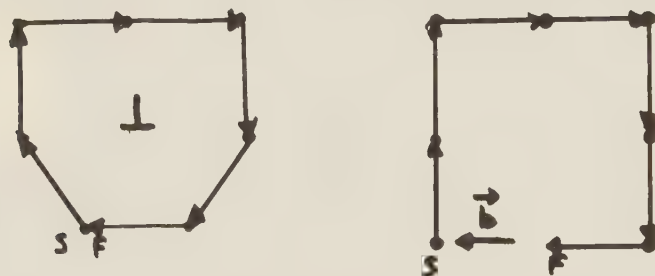
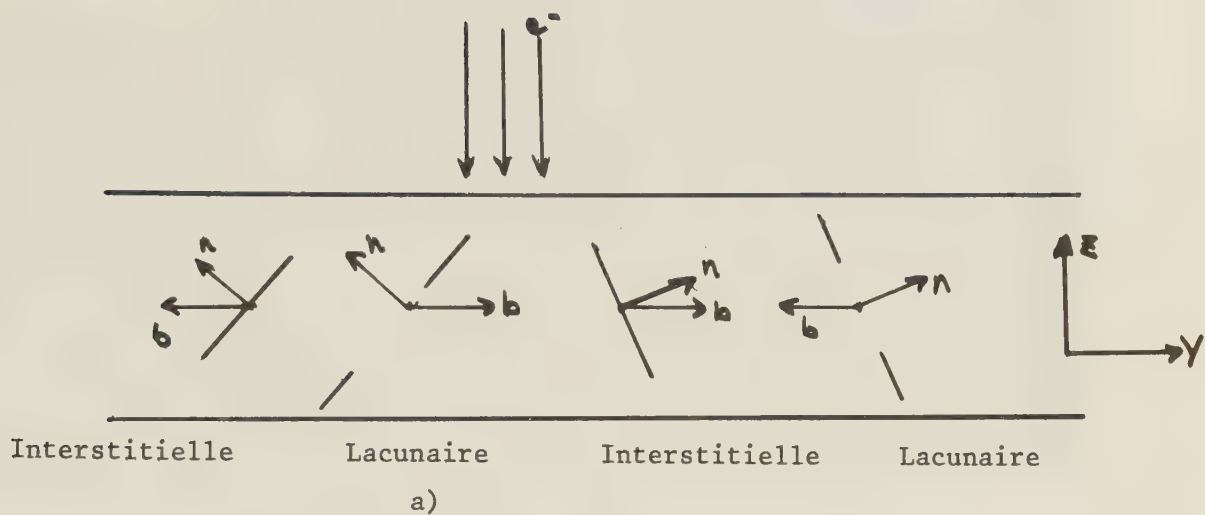
A partir du système d'équations (1) on déduit, par différence deux équations équivalentes en u :

$$\begin{aligned} \frac{d^2u}{dx^2} - \alpha k u + (\alpha - 1) k D_1 (C_1 - C_1^{th}) &= 0 \\ \frac{d^2u}{dx^2} - k u + (\alpha - 1) k D_i (C_i - C_i^{th}) &= 0 \end{aligned} \tag{2}$$

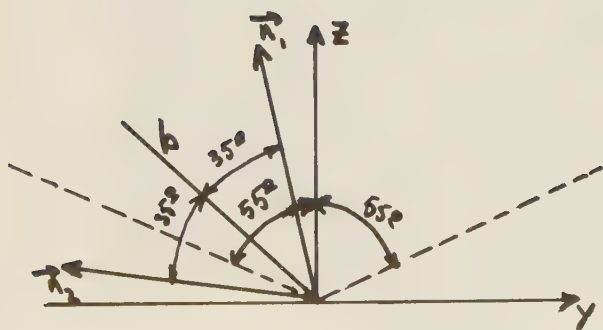
avec u = 0 pour x = 0 et x = b.

La résolution par une méthode numérique de ces deux systèmes d'équations permet d'obtenir les variations de C₁ et de u en fonction des différents paramètres.

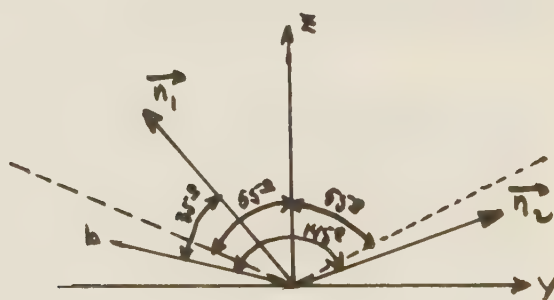
Ce sont ces différentes évaluations que nous avons utilisées pour calculer les taux de germination des cavités en utilisant le modèle quasi-chimique de germination homogène.



b) La convention FS/RH



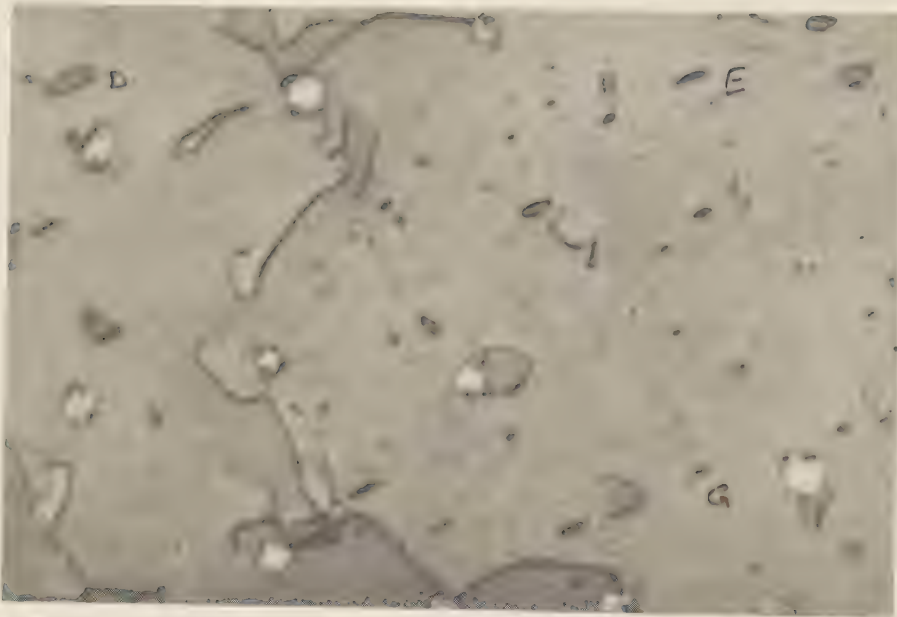
b est en position "sure"



b n'est pas en position "sure"

c) Schéma montrant l'angle solide dans lequel b doit se situer pour que la boucle puisse être analysée comme une boucle purement coin.

FIGURE A



$$g = [0\bar{2}0]$$

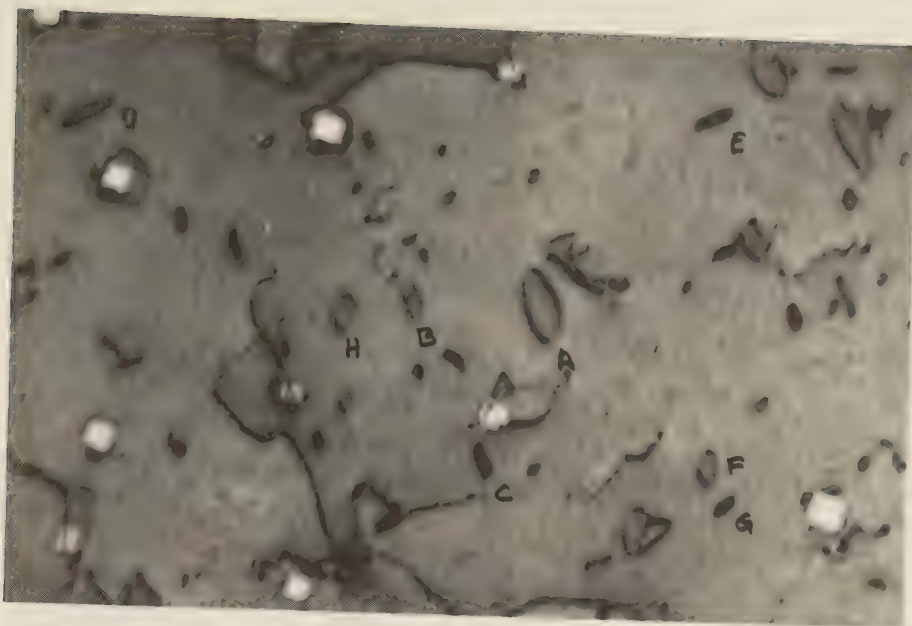


$$g = [200]$$



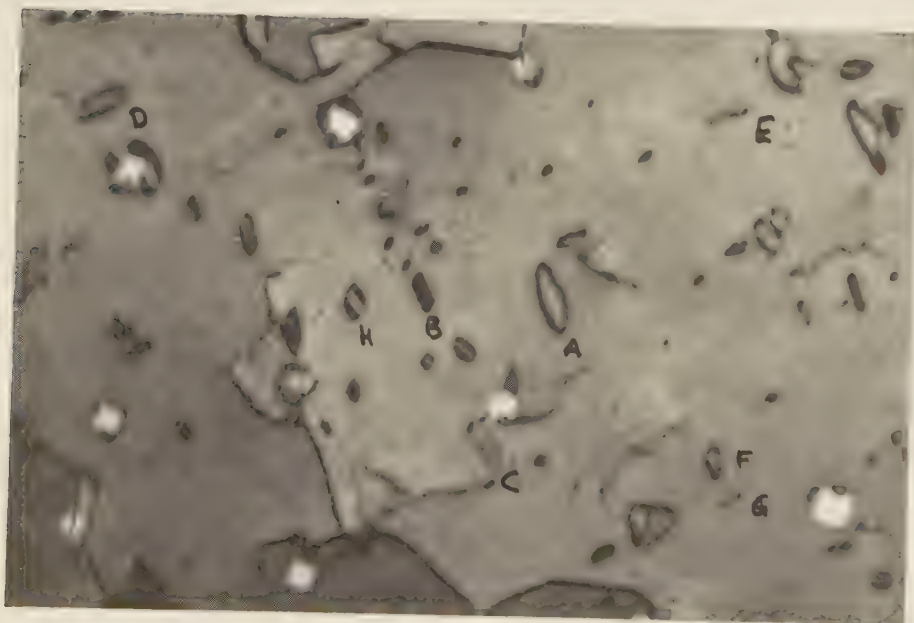
$$g = [\bar{1}11]$$

B · DETERMINATION DE LA DIRECTION DU VECTEUR DE BURGERS.



$$g = [2\bar{2}0]$$

$$s > 0$$



$$g = [\bar{2}20]$$

$$s > 0$$

C : DETERMINATION DU SENS DU VECTEUR DE BURGERS.

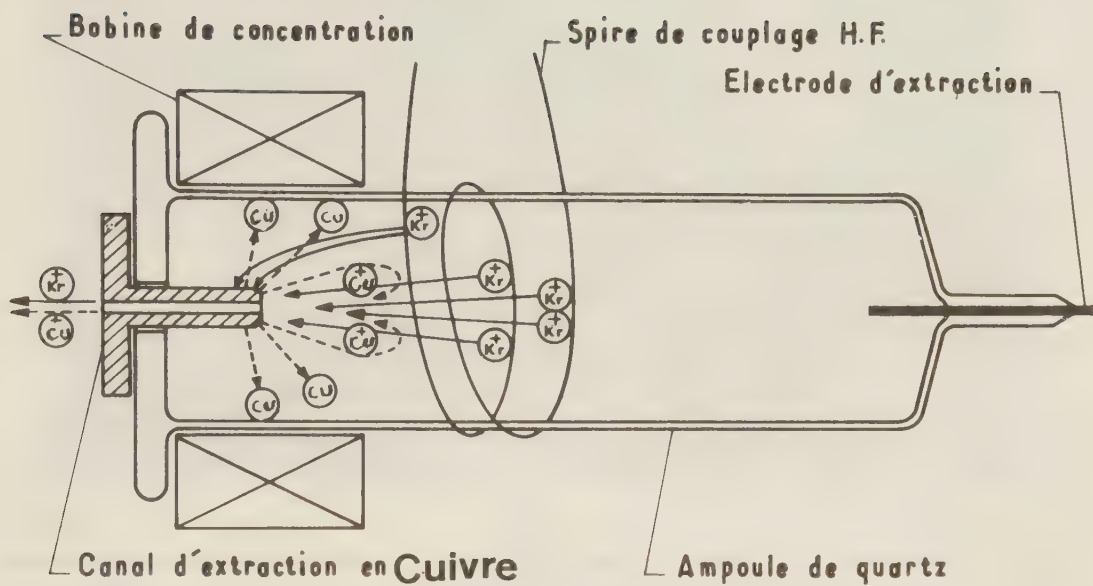


Fig. 1. Source d'ions lourds.

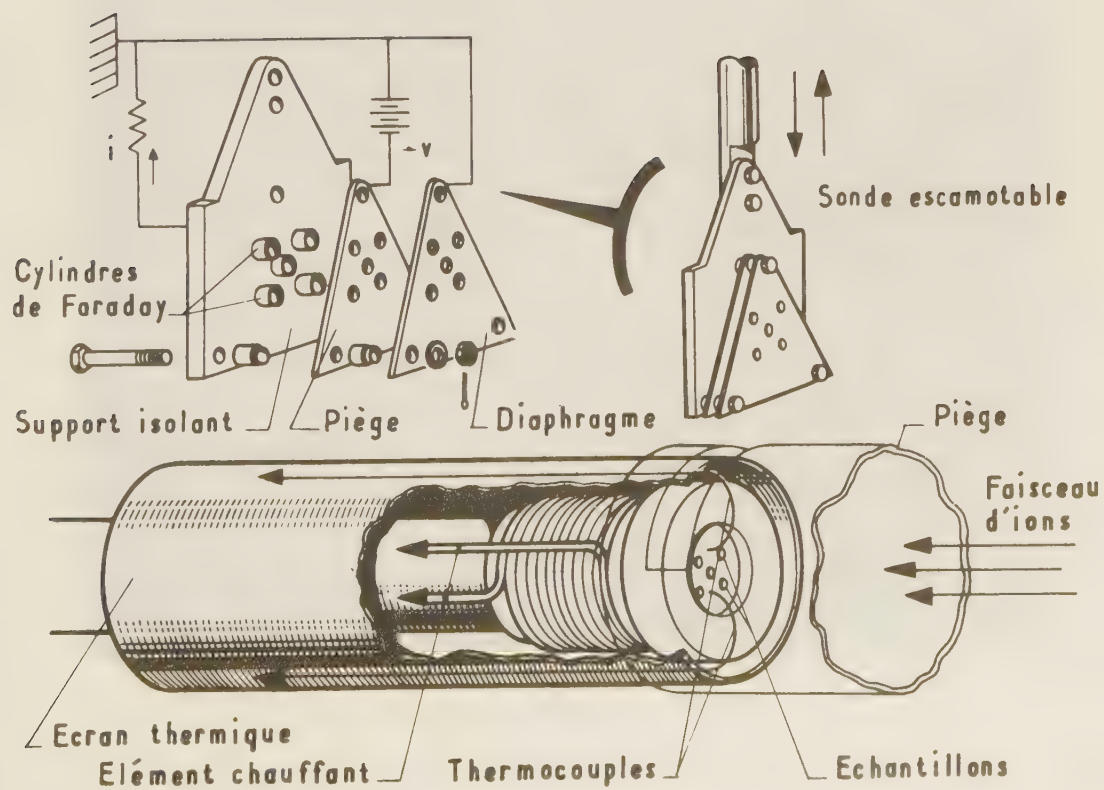
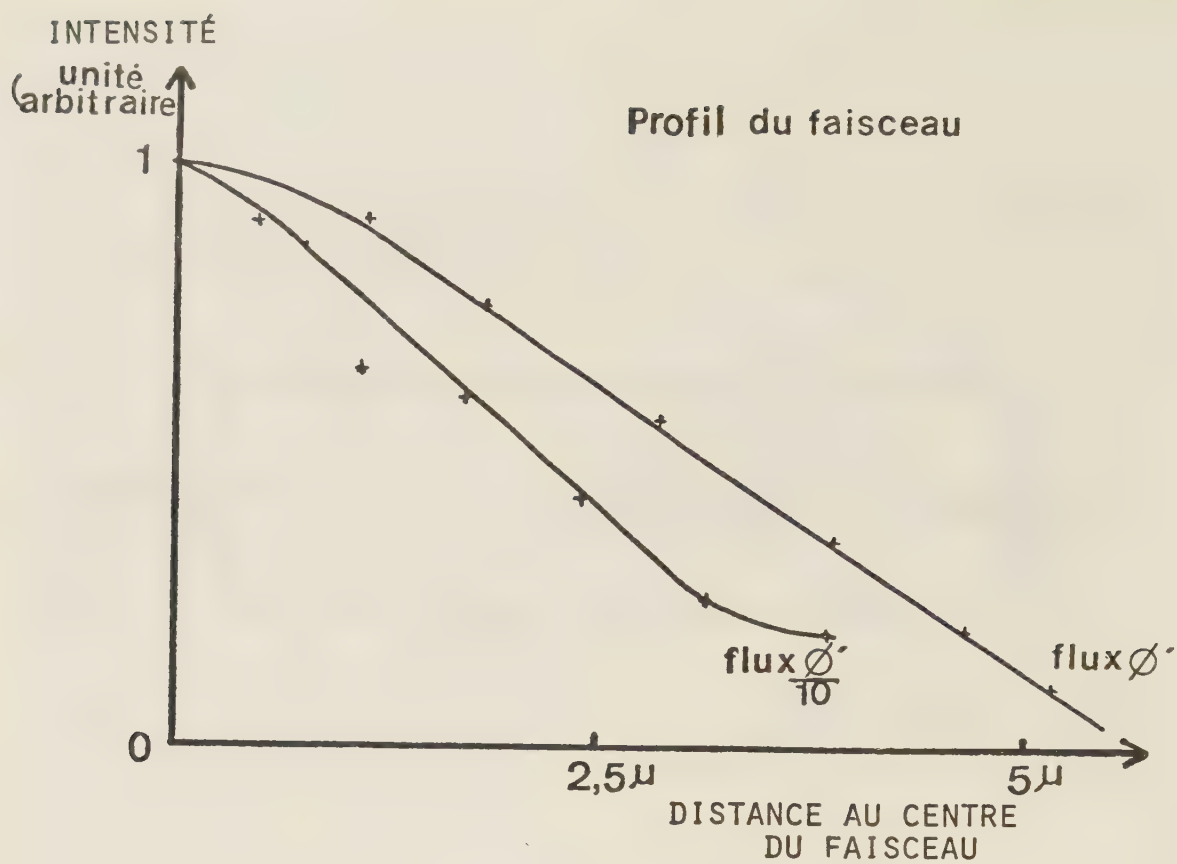
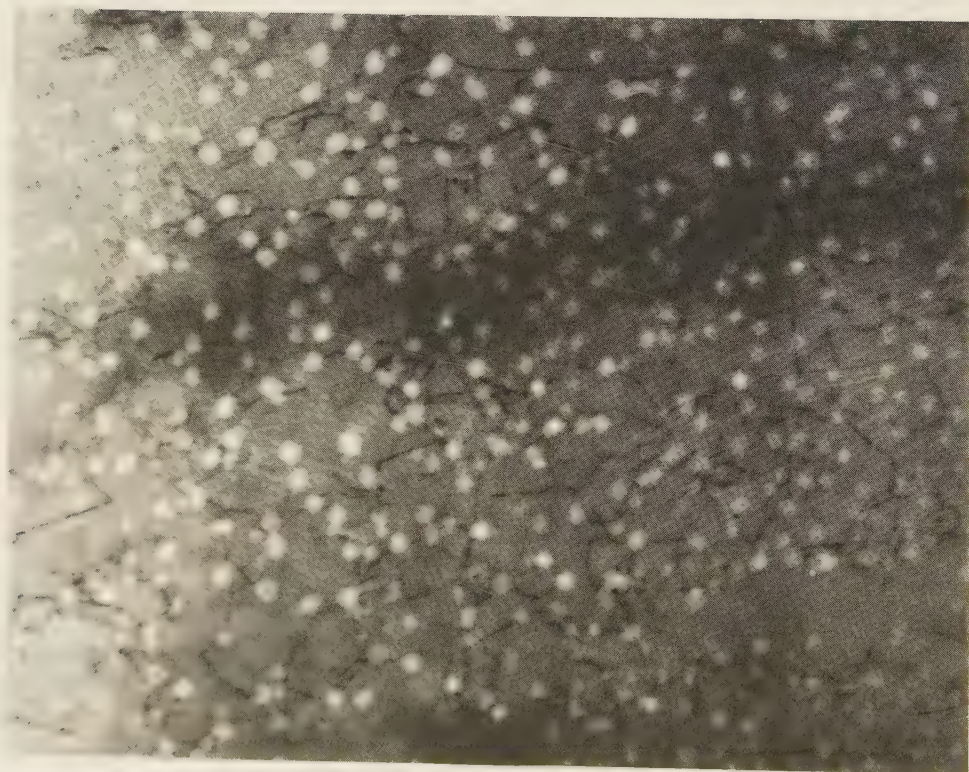


Fig. 2. Porte-échantillons chauffant et sonde escamotable.

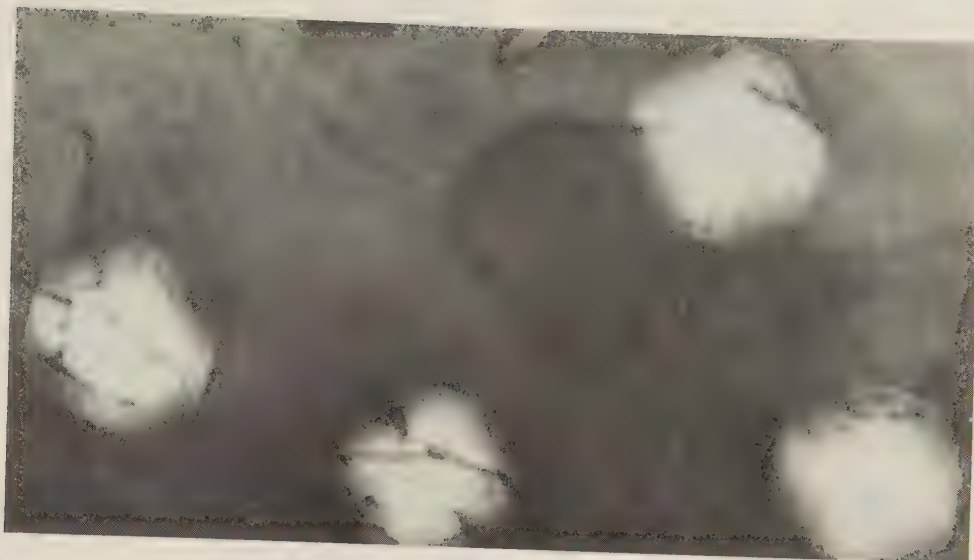


a)

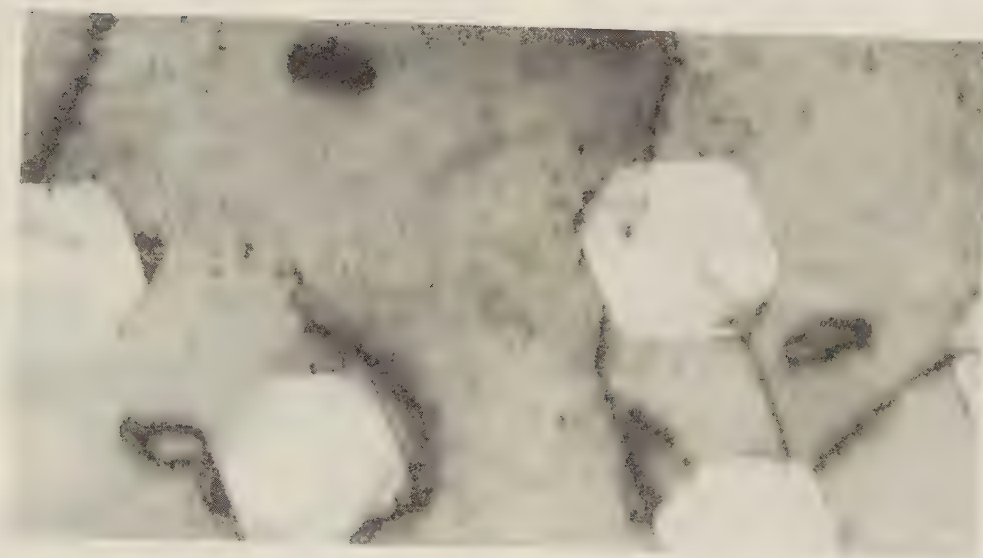


b)

FIGURE 3 : a) Profil du faisceau d'électrons du microscope de 1 MeV
b) Aspect de la plage irradiée
a) et b) sont à la même échelle



(a)



(b)

FIGURE 4 : FORME DES CAVITES

a) plan moyen de la lame : $\{100\}$

b) plan moyen de la lame : $\{110\}$

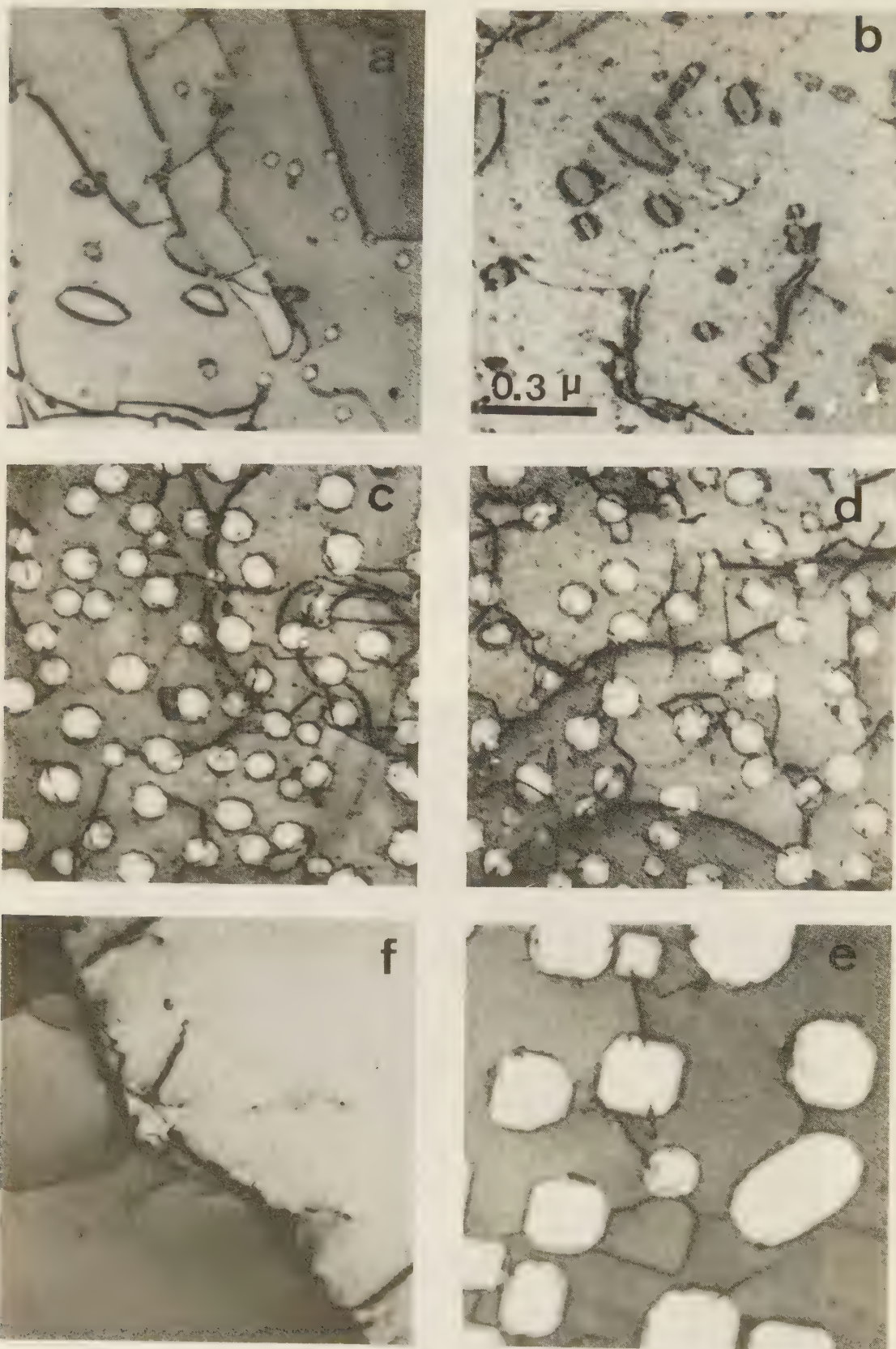


FIGURE 5 : ASPECT DES LAMES EN FONCTION DU FLUX INSTANTANE ET DE LA TEMPERATURE.

(a), (c) et (f) Flux $\phi/10$; (b), (d) et (e) Flux ϕ
a et b : 400°C - c et d : 450°C - e et f : 500°C

($G = 60000$)

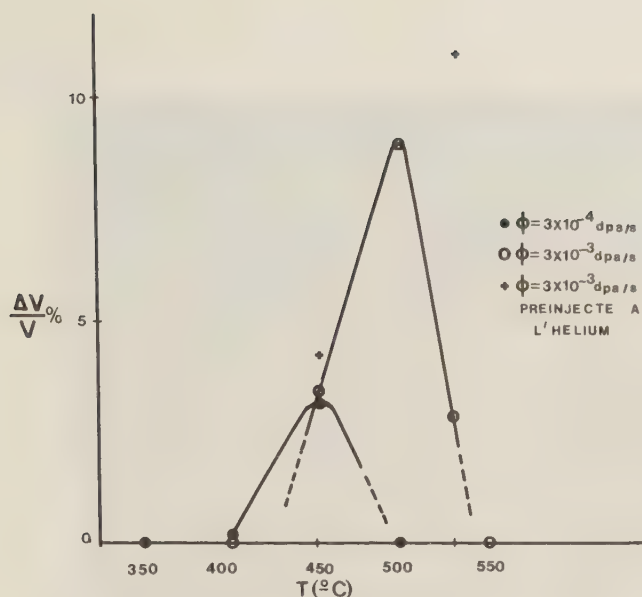


FIGURE 6 : VARIATION DU TAUX DE GONFLEMENT EN FONCTION DE LA TEMPERATURE D'IRRADIATION.

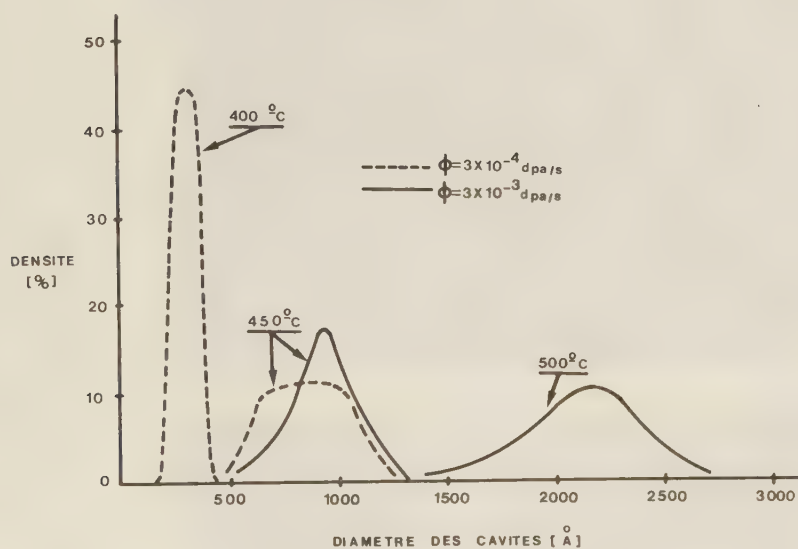


FIGURE 7 : EVOLUTION DE LA REPARTITION EN TAILLE DES CAVITES.

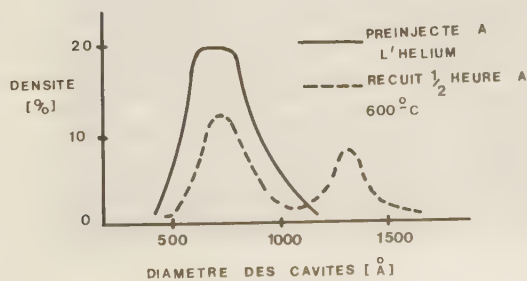


FIGURE 8 : REPARTITION DE LA TAILLE DES CAVITES POUR DES ECHANTILLONS RECUITS ET DES ECHANTILLONS IMPLANTES EN HELIUM. CONDITIONS D'IRRADIATION : 450°C - FLUX Φ .

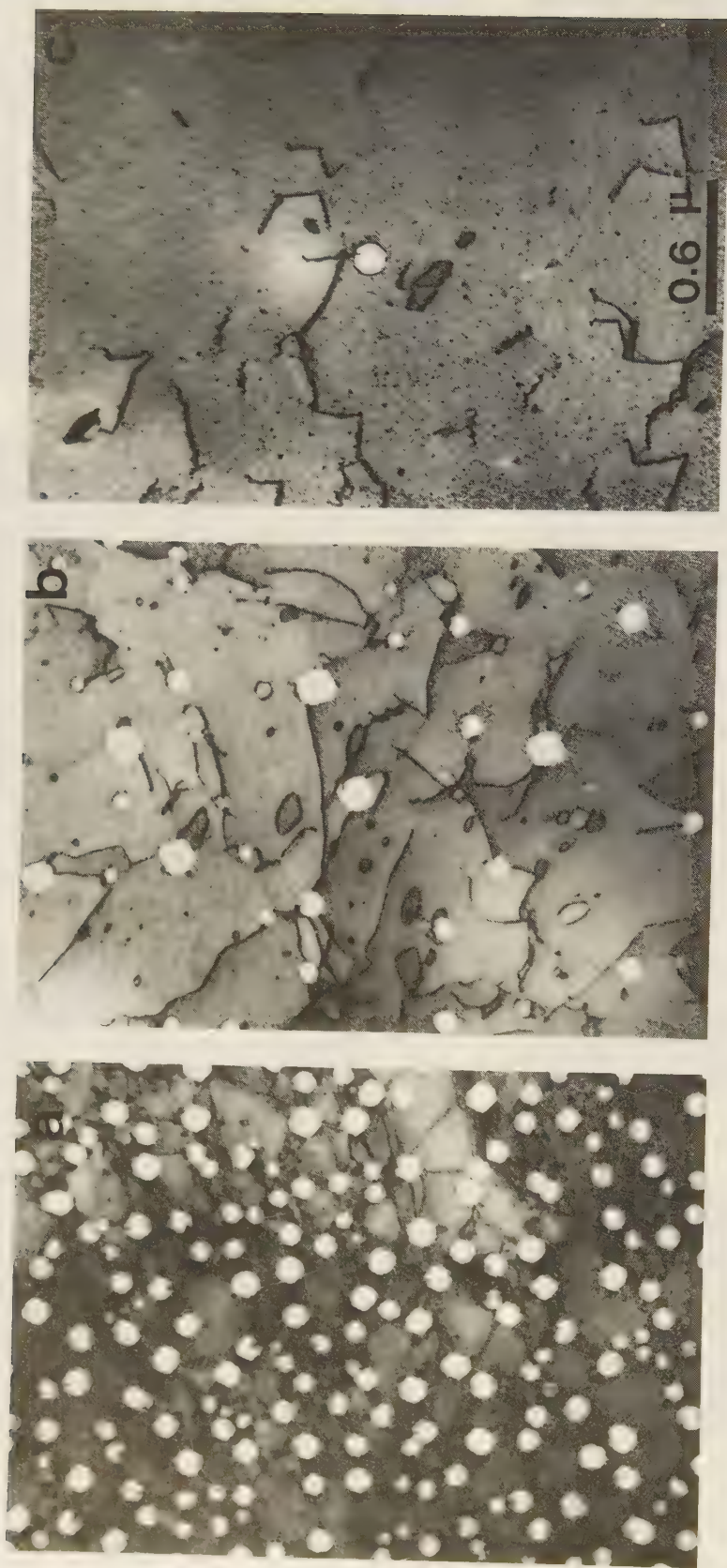


FIGURE 9 : EFFET D'UN RECUIT AVANT IRRADIATION.

(a) Sans recuit préalable, (b) Recuit 1/2 h à 600°C, (c) Recuit 1/2 h à 700°C. CONDITIONS D'IRRADIATION : 450°C - FLUX ϕ .

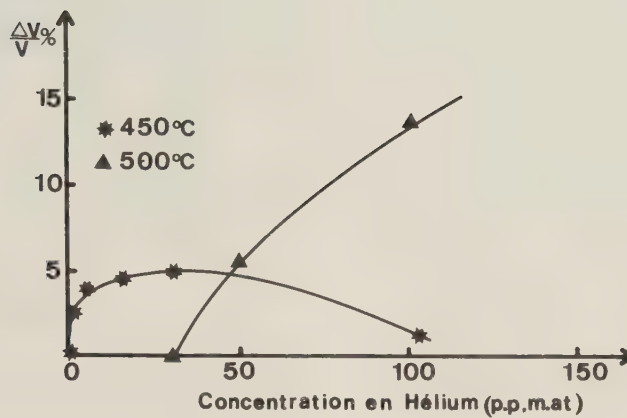


FIGURE 10 : VARIATION DU GONFLEMENT EN FONCTION DE LA TENEUR EN HELIUM.

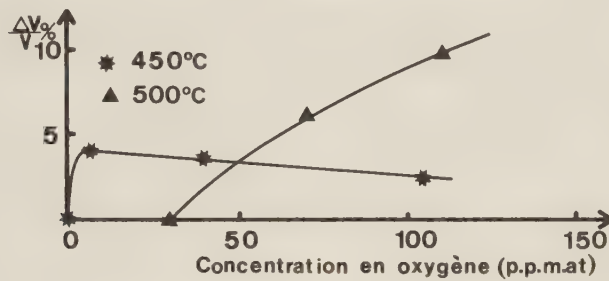


FIGURE 11 : VARIATION DU GONFLEMENT EN FONCTION DE LA TENEUR EN OXYGENE.

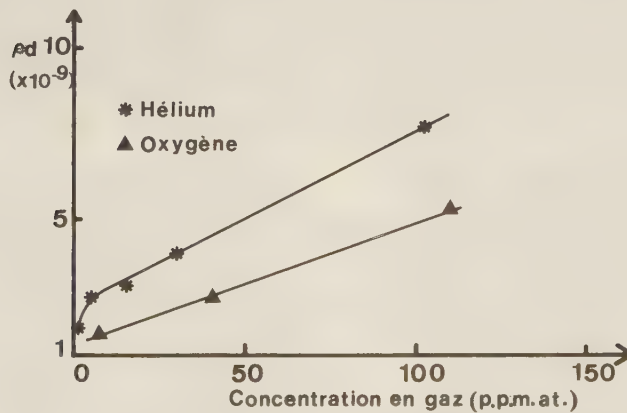


FIGURE 12 : VARIATION DE LA DENSITE DE DISLOCATIONS EN FONCTION DE LA TENEUR EN GAZ. CONDITIONS D'IRRADIATION : 450°C - FLUX Φ .

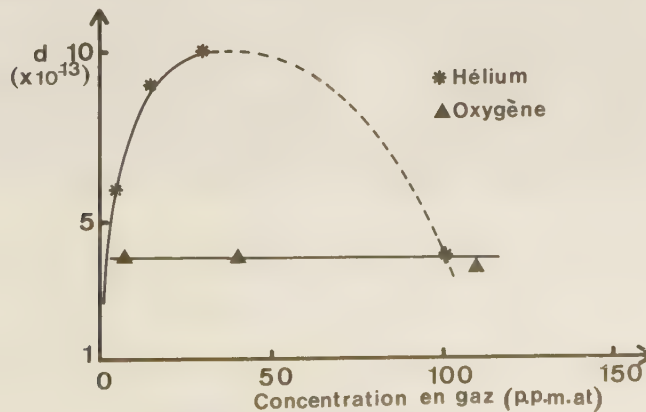
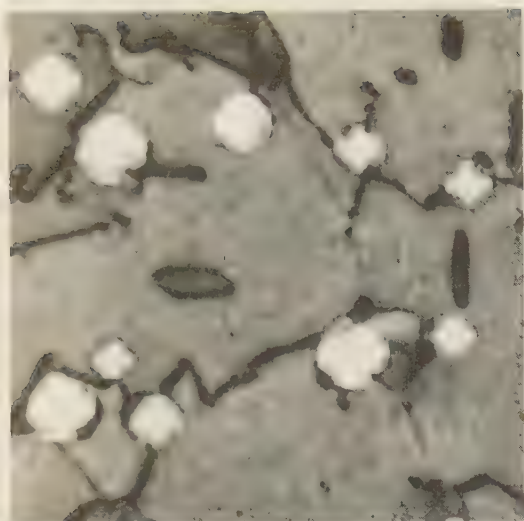
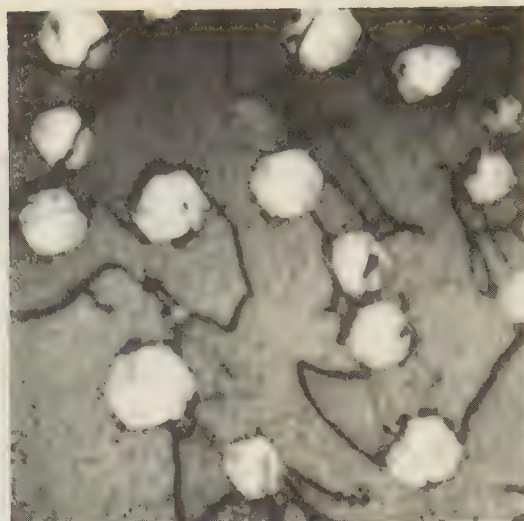


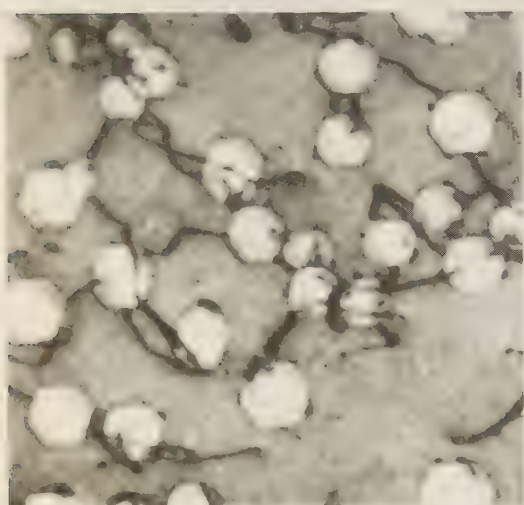
FIGURE 13 : VARIATION DE LA DENSITE DE CAVITES EN FONCTION DE LA TENEUR EN GAZ. CONDITIONS D'IRRADIATION : 450°C - FLUX Φ .



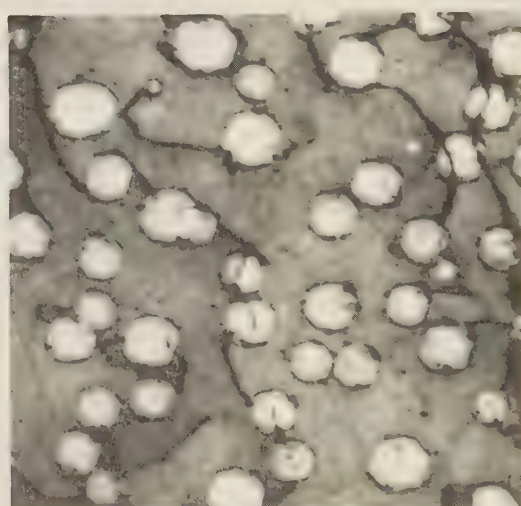
a



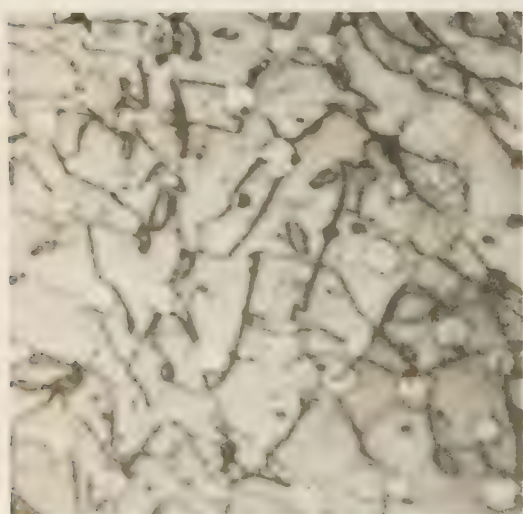
b



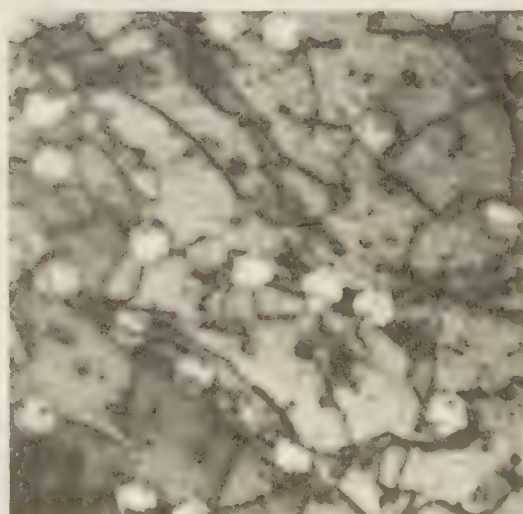
c



d



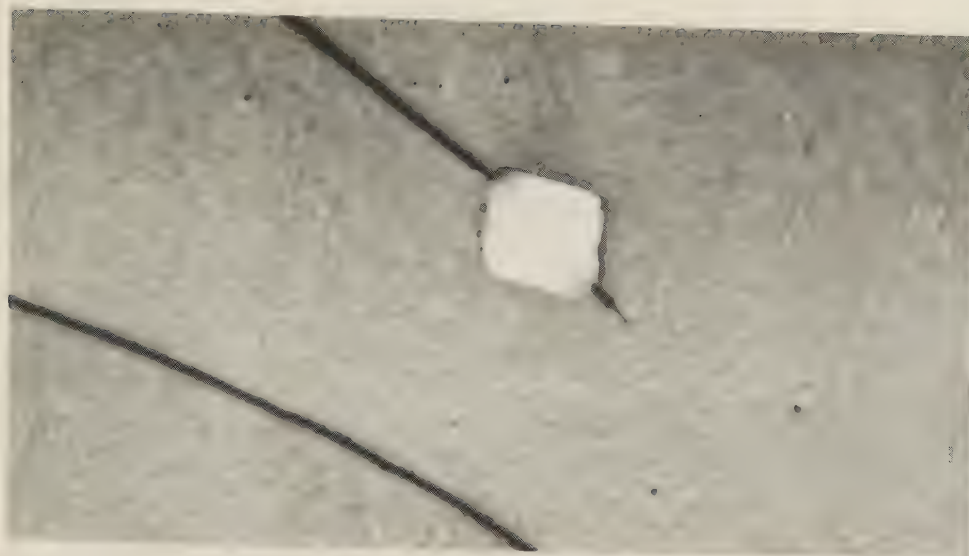
e



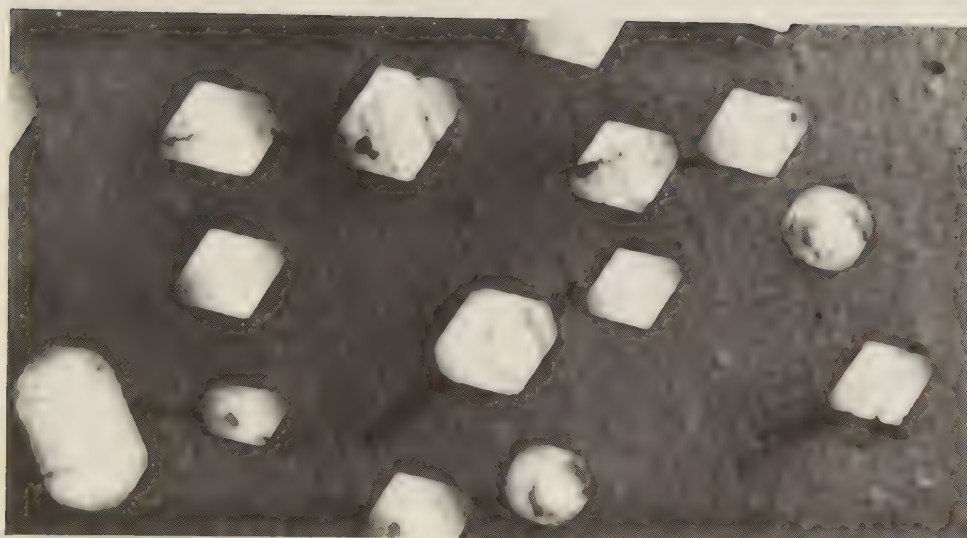
f

FIGURE 14 : EVOLUTION DE LA MICROSTRUCTURE DES ECHANTILLONS EN FONCTION DE LA CONCENTRATION EN HELIUM. CONDITIONS D'IRRADIATION 450°C FLUX Φ

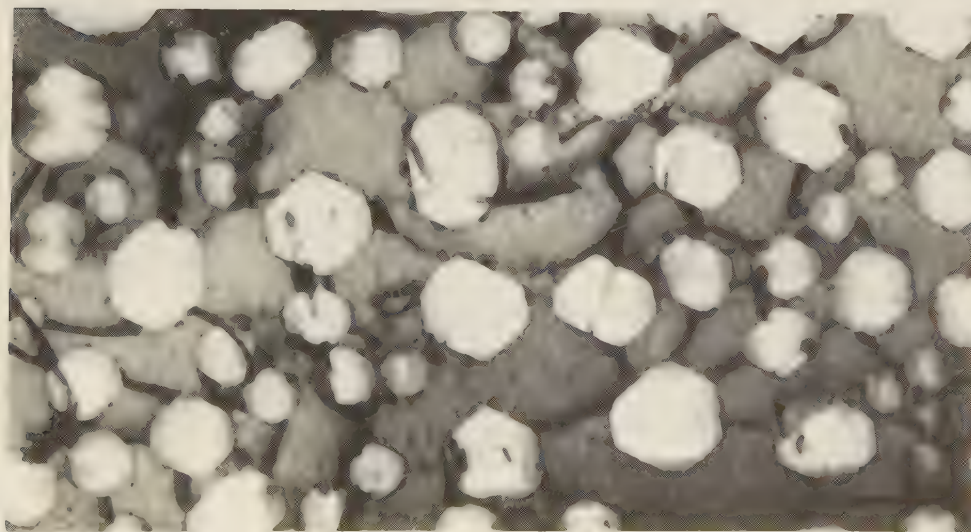
a : 1 ppm at.; b : 5 ppm at.; c : 15 ppm at.; d : 30 ppm at.;
e : 74 ppm at.; f 102 ppm at. ($G = 60000$)



a) 30 ppm at.



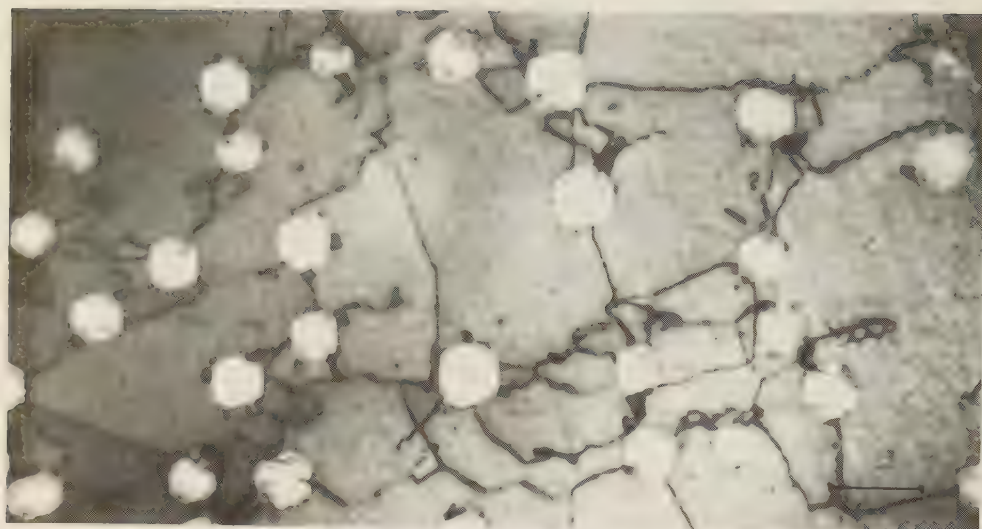
b) 50 ppm at.



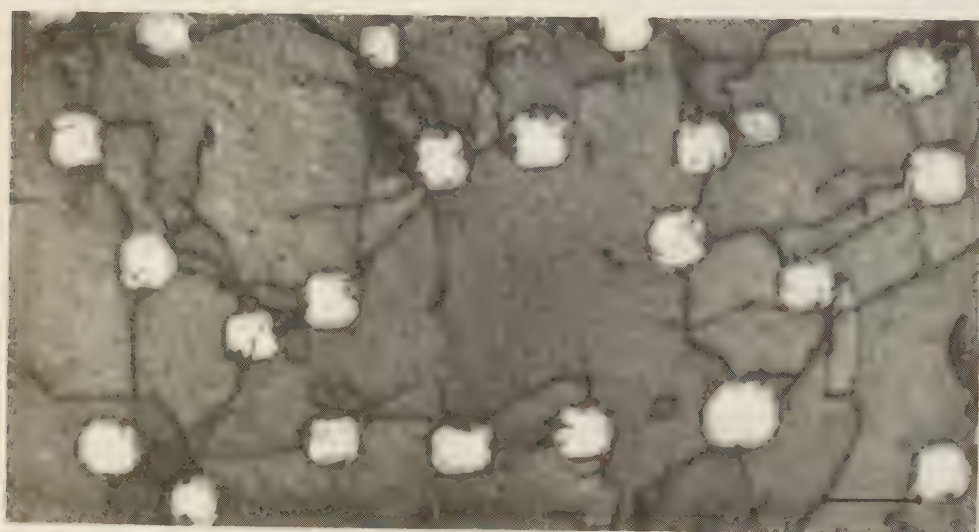
c) 100 ppm at.

FIGURE 15 : EVOLUTION DE LA MICROSTRUCTURE DES ECHANTILLONS EN FONCTION DE LA CONCENTRATION EN HELIUM. CONDITIONS D'IRRADIATION 500°C FLUX Φ

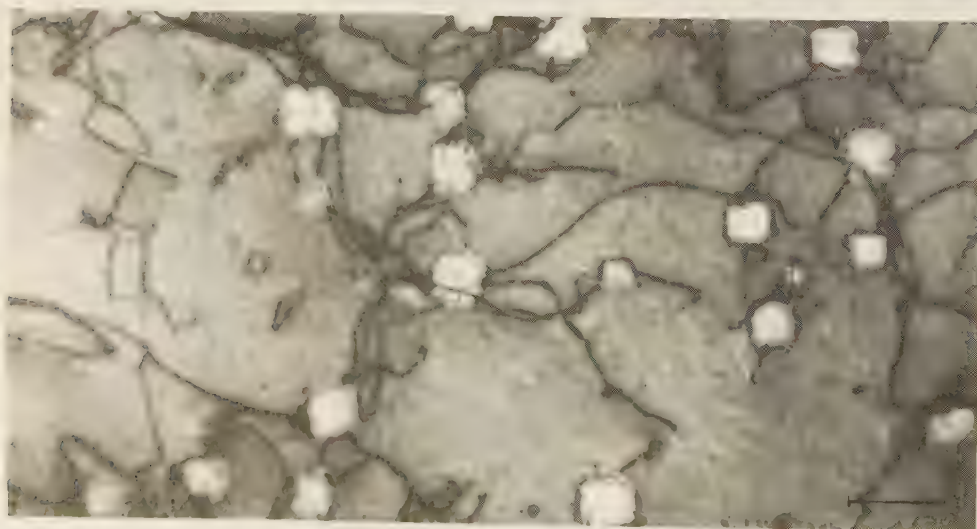
($G = 60000$)



a) 7 ppm at.



b) 40 ppm at.



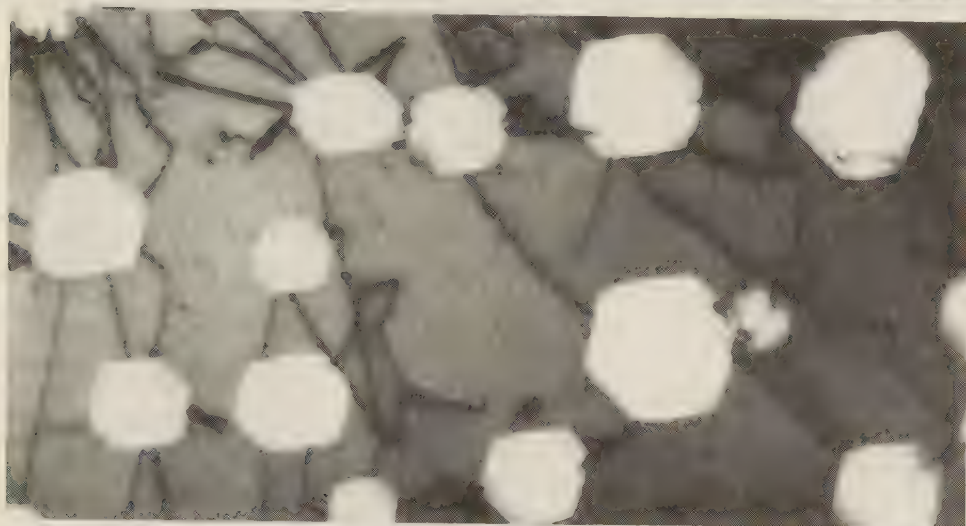
c) 105 ppm at.

FIGURE 16 · EVOLUTION DE LA MICROSTRUCTURE DES ECHANTILLONS EN FONCTION DE LA CONCENTRATION EN OXYGENE. CONDITIONS D'IRRADIATION 450°C FLUX Φ

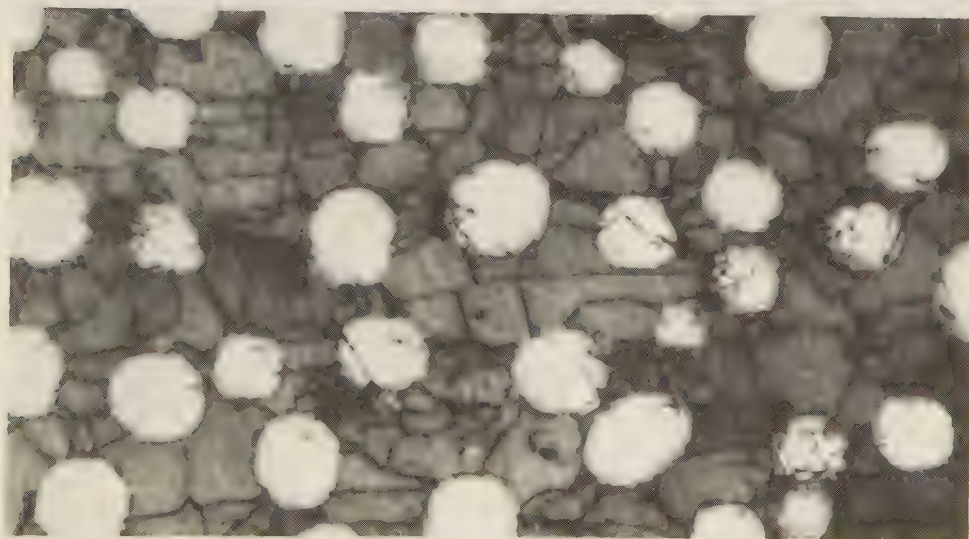
($G = 60000$)



a) 30 ppm at.



b) 70 ppm at.



c) 110 ppm at.

FIGURE 17 : EVOLUTION DE LA MICROSTRUCTURE DES ECHANTILLONS EN FONCTION DE LA CONCENTRATION EN OXYGENE. CONDITIONS D'IRRADIATION 500°C FLUX Φ

($G = 60000$)

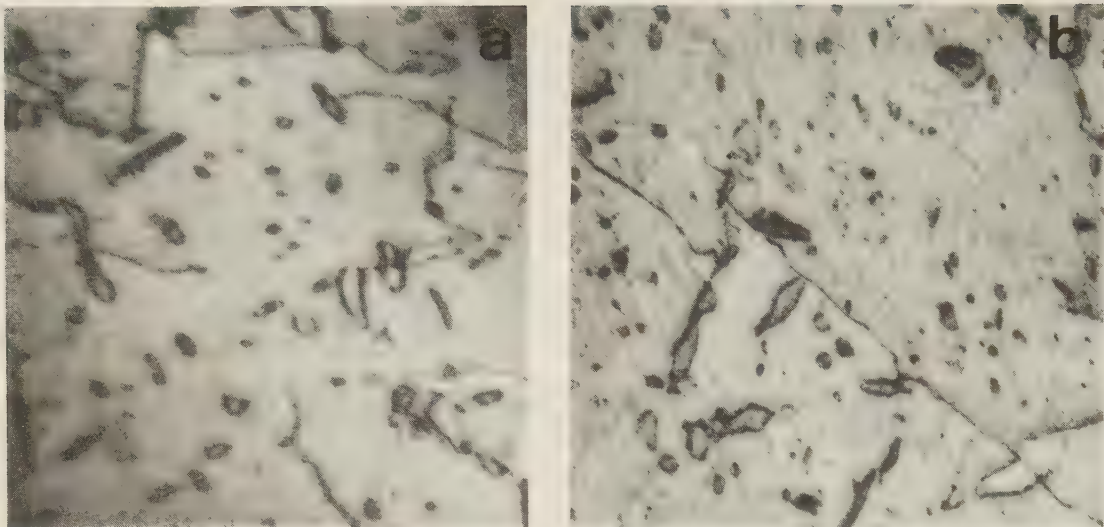


FIGURE 18 a - EFFET DU KRYPTON. CONDITIONS D'IRRADIATION 450 °C FLUX Φ
 a) 10 ppm at. b) 50 ppm at.
 ($G = 60000$)

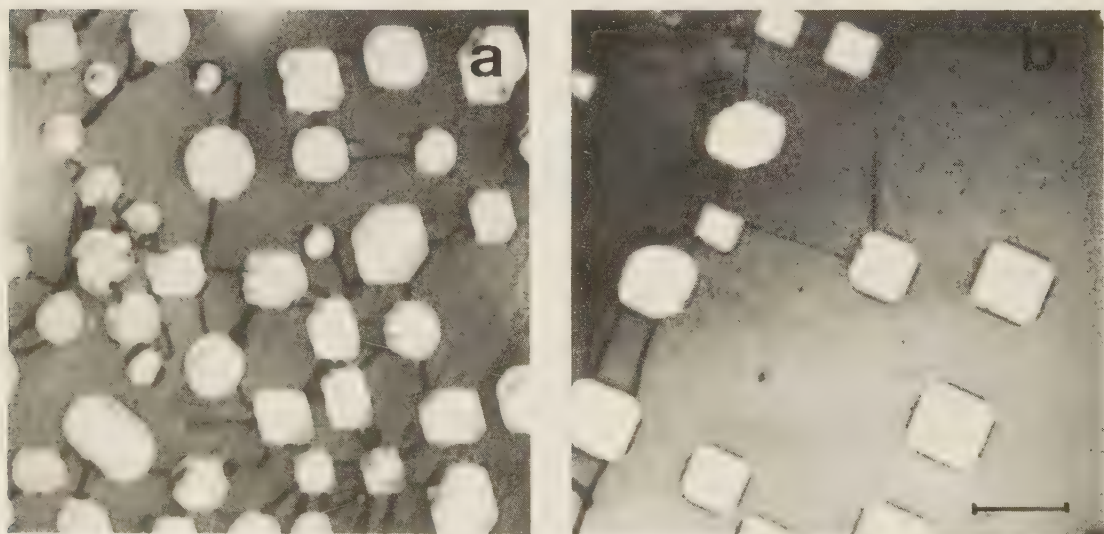


FIGURE 18 b - EFFET D'UNE PEINJECTION D'HELIUM DANS DU CUIVRE BRUT.
 FLUX Φ TEMPERATURE D'IRRADIATION 530 °C.
 a) Avec préinjection d'hélium b) Sans préinjection d'hélium
 ($G = 60000$)



a) 5 mn
(0,83 d.p.a.)



b) 10 mn
(1,67 d.p.a.)



c) 3 heures
(30 d.p.a.)

FIGURE 19 : EVOLUTION DE LA MICROSTRUCTURE EN FONCTION DE LA DOSE
DANS LE CUIVRE RECUIT SOUS VIDE. CONDITIONS D'IRRADIATION
450°C FLUX Φ

($G = 60000$)

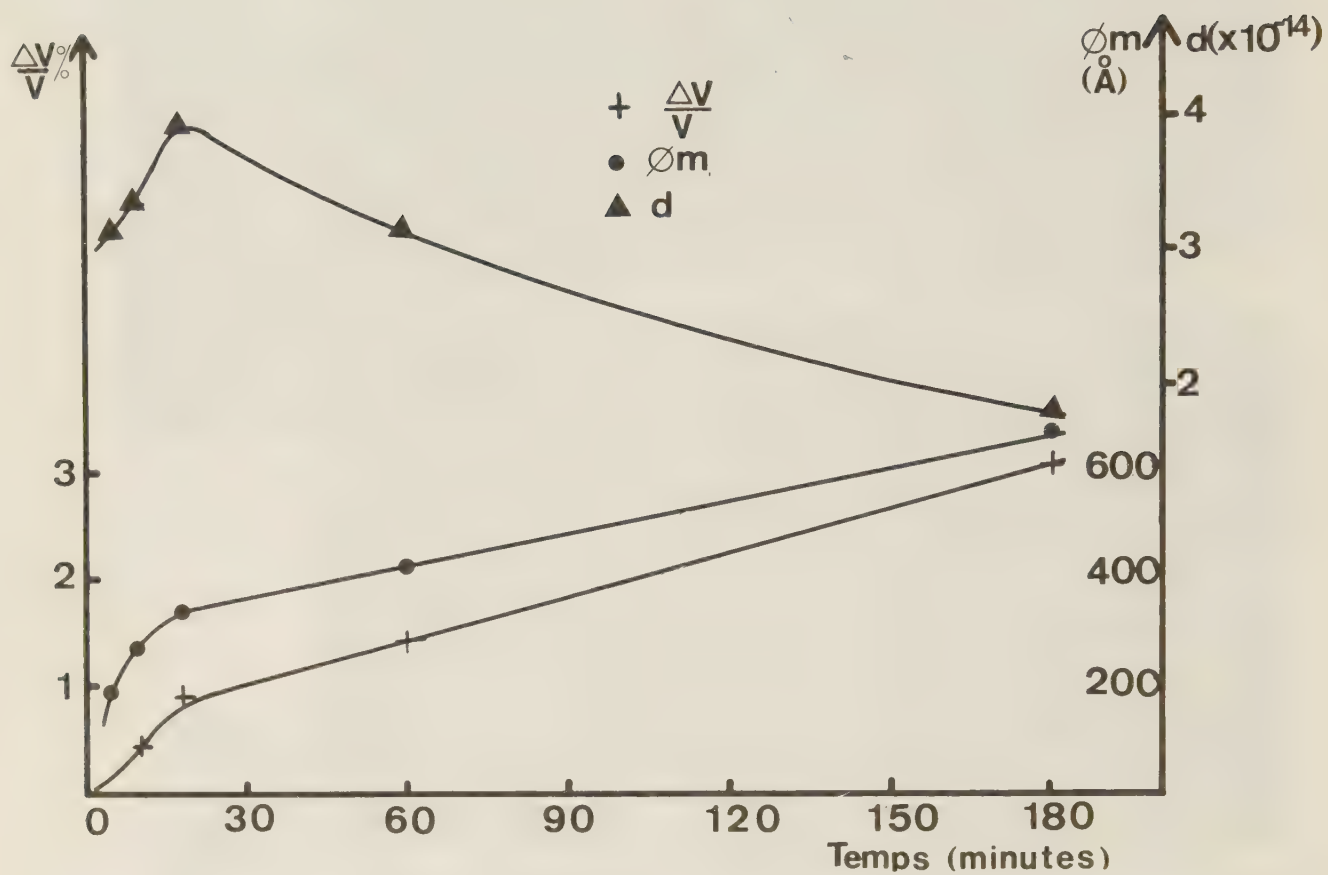
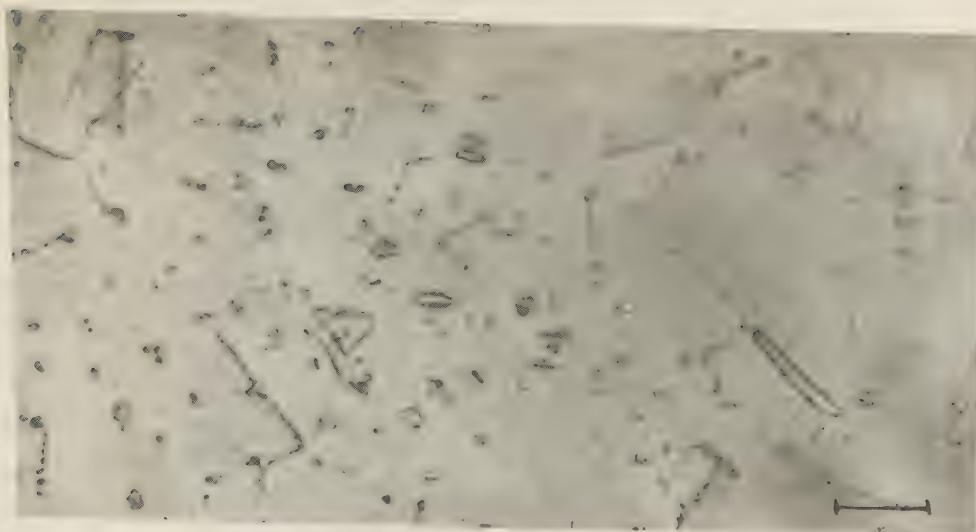


FIGURE 20 : VARIATION DU GONFLEMENT, DE LA DENSITE ET DU DIAMETRE MOYEN DES CAVITES EN FONCTION DE LA DOSE. IRRADIATIONS A 450°C FLUX Φ .



a) 5 mn
(0,83 d.p.a.)

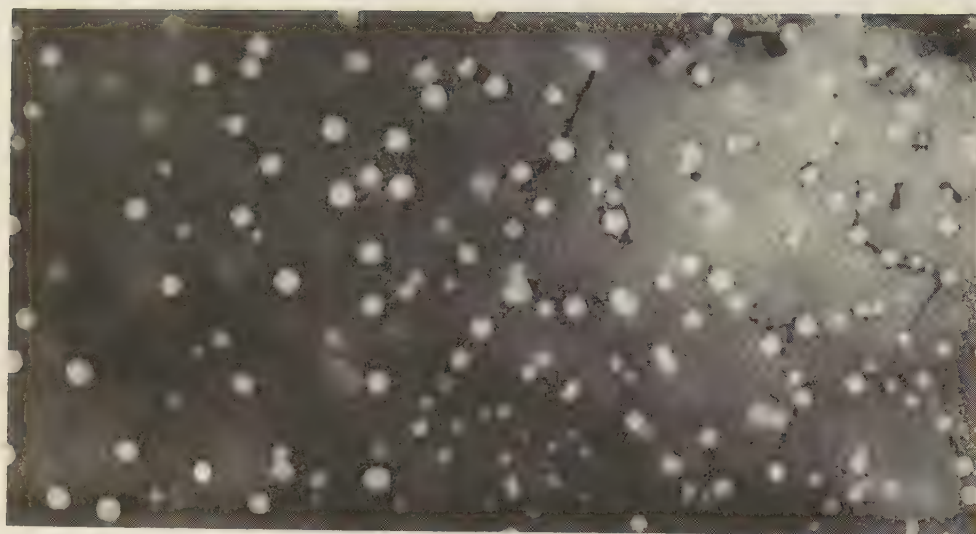


b) 10 mn
(1,67 d.p.a.)

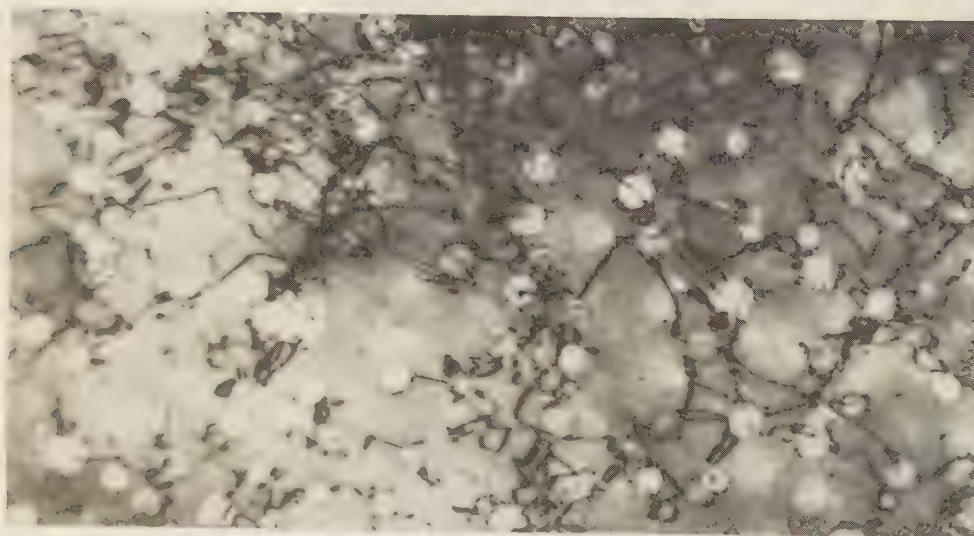


c) 18 mn
(3 d.p.a.)

FIGURE 21 : INFLUENCE DE LA DOSE SUR LA MICROSTRUCTURE DES
ECHANTILLONS. CONDITIONS D'IRRADIATION 450°C FLUX ϕ
($G = 60000$)



a) 1 heure
(10 d.p.a.)



b) 3 heures
(30 d.p.a.)

FIGURE 22 : INFLUENCE DE LA DOSE SUR LA MICROSTRUCTURE DES
ECHANTILLONS. CONDITIONS D'IRRADIATION : 450°C FLUX Φ
($G = 60000$)

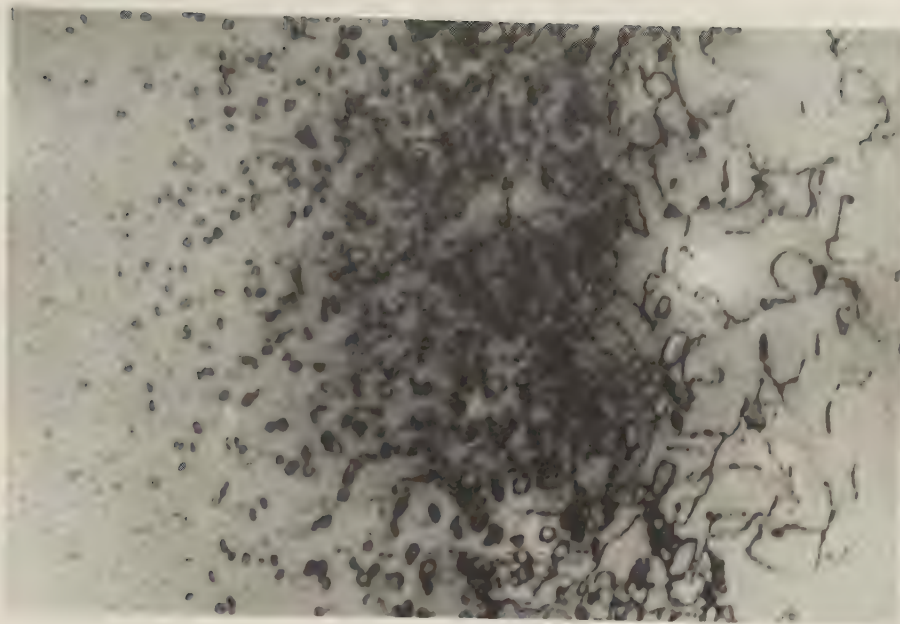
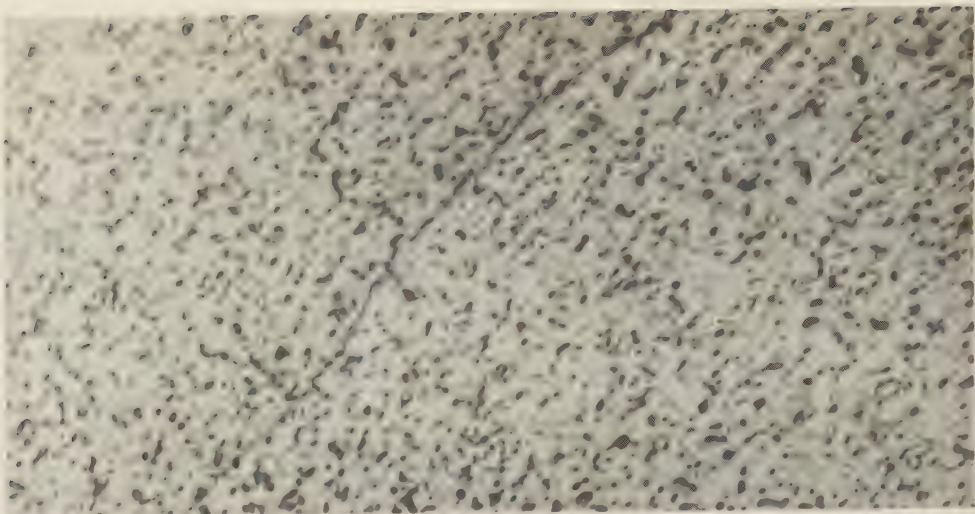


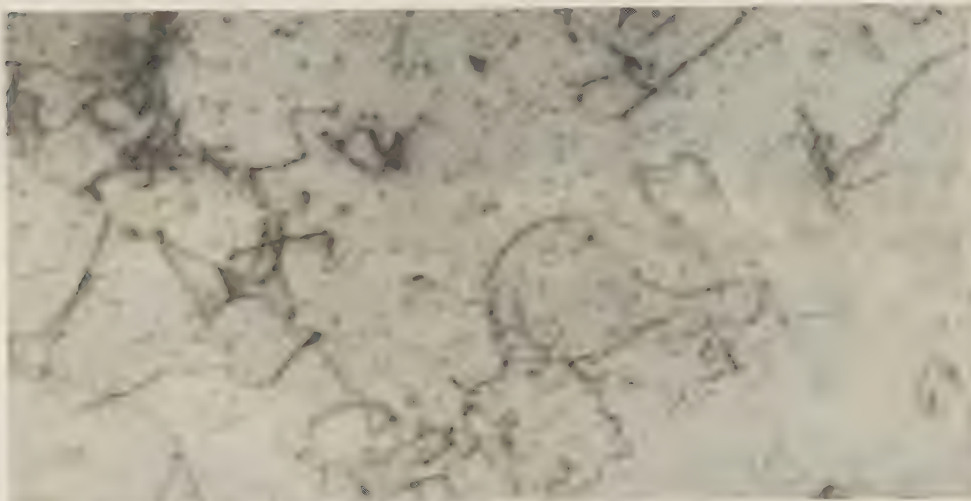
FIGURE 23 : CUIVRE BRUT AYANT SUBI 15 mn D'IRRADIATION A 100°C SUIVIE DE 2 heures D'IRRADIATION A 300°C. EPAISSEUR DE LA LAME $\approx 4000 \text{ \AA}$.
(G = 13000)



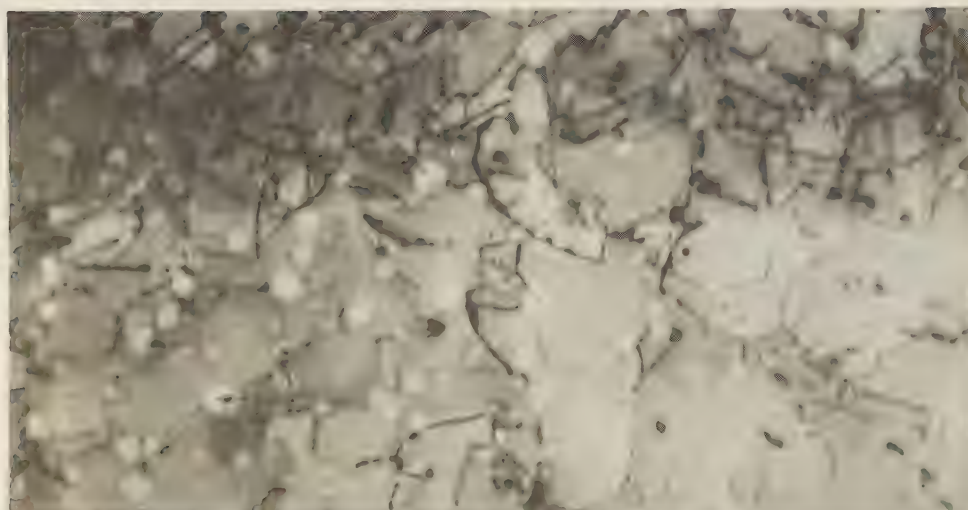
FIGURE 24 : CUIVRE BRUT AYANT SUBI 30 mn D'IRRADIATION A 100°C SUIVIE DE 3 heures D'IRRADIATION A 300°C. EPAISSEUR DE LA LAME $\approx 6000 \text{ \AA}$.
(G = 30000)



a)



b)



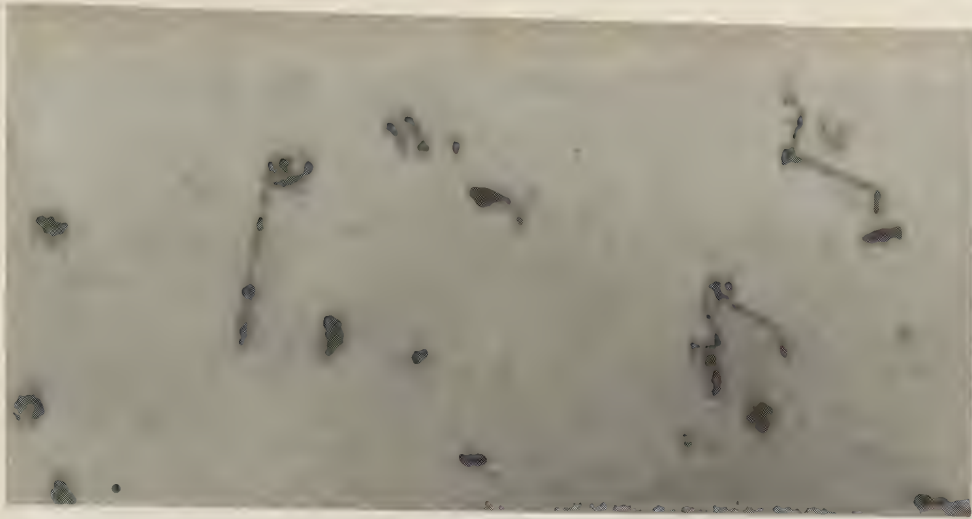
c)

FIGURE 25 : a) ASPECT DES LAMES APRES IMPLANTATION D'ENVIRON 100 ppm at.
D'HELIUM.

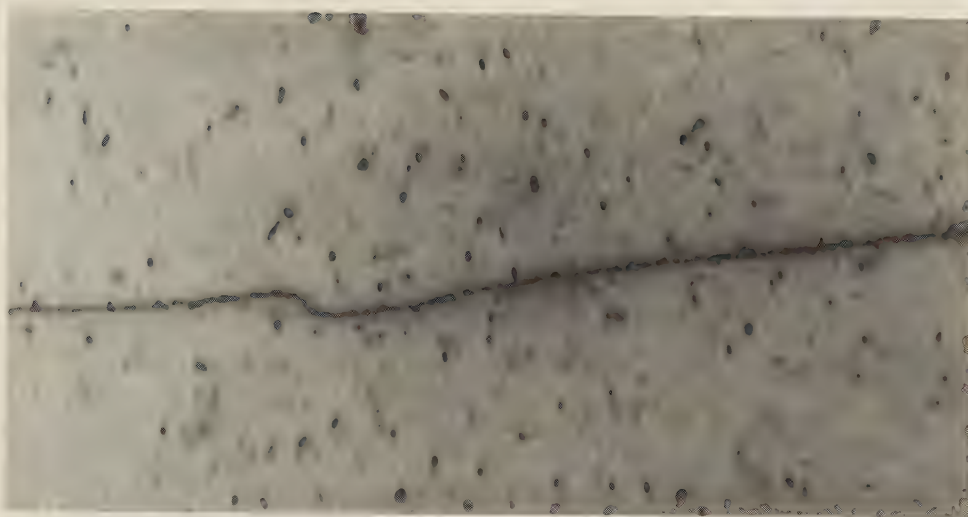
b) ASPECT DE LA LAME APRES 2 heures D'IRRADIATION A 250°C.

c) ASPECT DE LA LAME APRES 1h20mn D'IRRADIATION A 450°C.

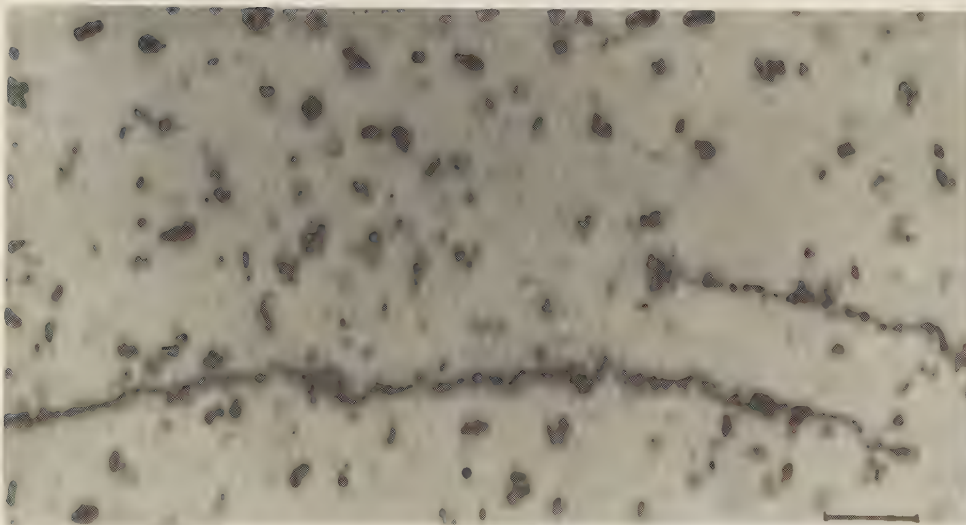
(G = 30000)



a)



b)



c)

FIGURE 26 : INFLUENCE DES CONDITIONS DE DIFFRACTION SUR LA CREATION
DES DEFAUTS DANS LE CUIVRE DEGAZE.

a) $s > 0$ b) $s = 0$ c) $s < 0$
($G = 30000$)



FIGURE 27 : CUIVRE AYANT SUBI UN RECUIT D'UNE DEMI HEURE A 700°C SOUS UN VIDE DE 6×10^{-9} torr SUIVIE D'UN LEGER ECROUISSAGE AVANT IRRADIATION. CONDITIONS D'IRRADIATION : 300°C PENDANT 2 heures.
(G = 30000)

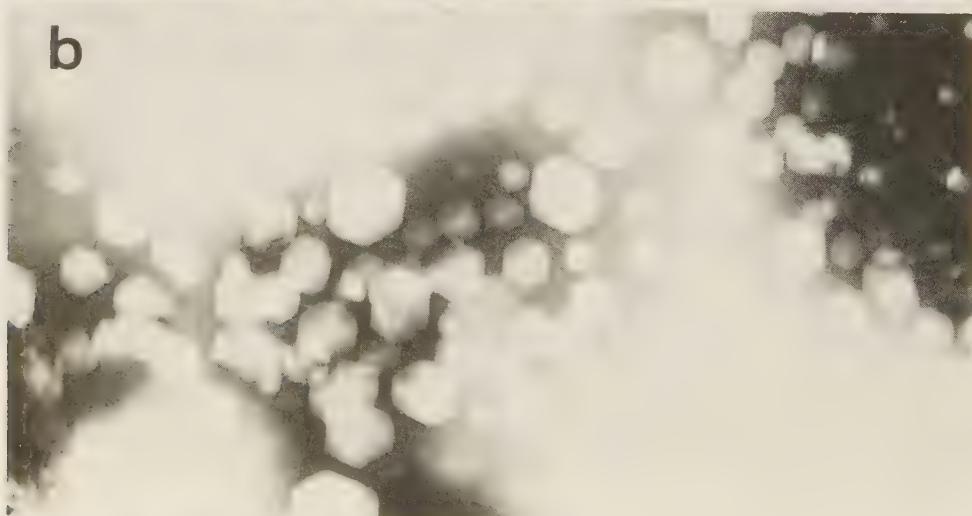
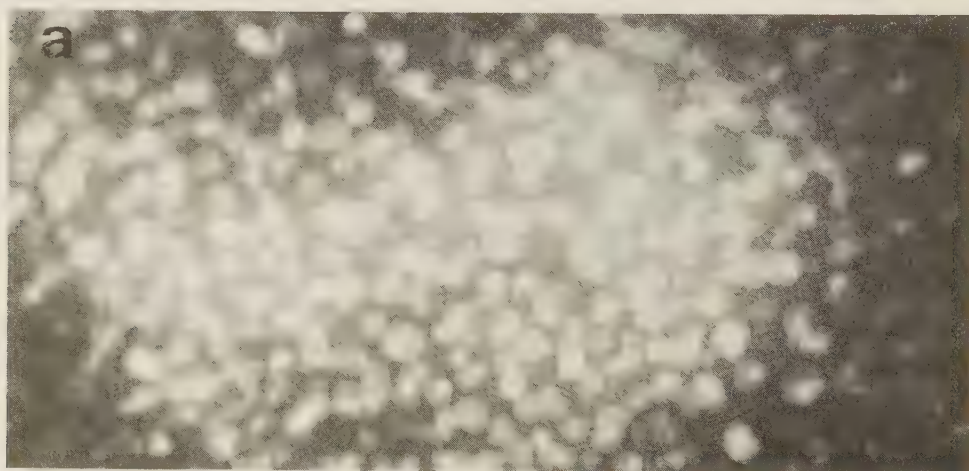


FIGURE 28 : CUIVRE BRUT AYANT SUBI 20 mn D'IRRADIATION A 100°C SUIVIE D'UNE IRRADIATION A 450°C.

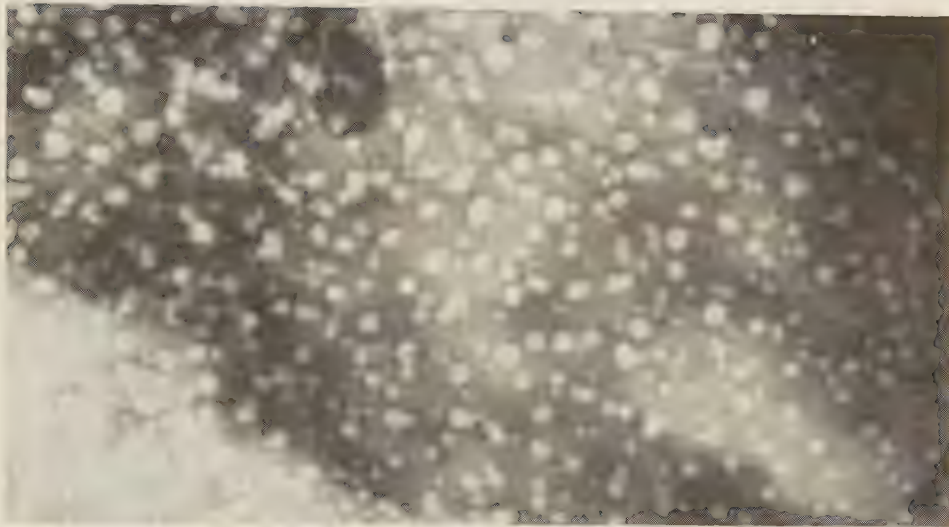
a) Après 1 heure d'irradiation

b) Après 2h30mn d'irradiation

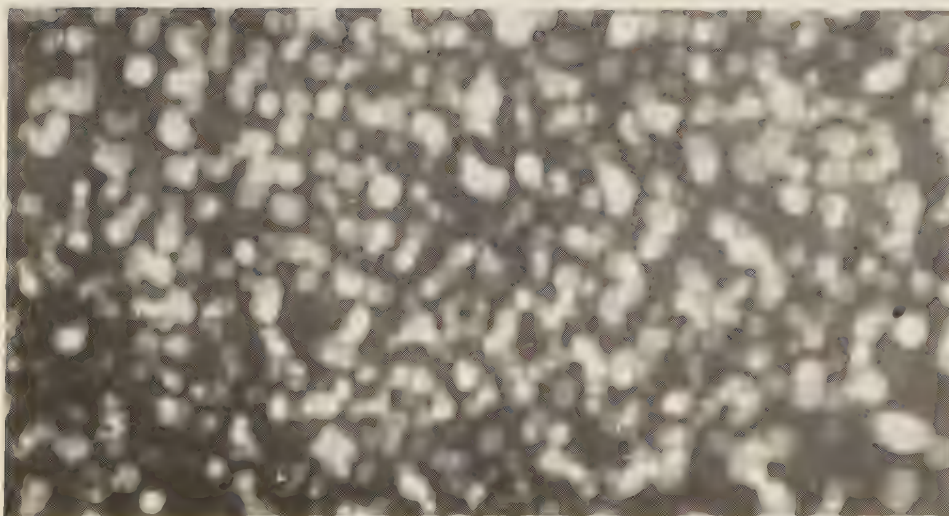
(G = 30000)



a)



b)



c)

FIGURE 29 : EVOLUTION DE LA MICROSTRUCTURE EN FONCTION DE LA TEMPERATURE D'IRRADIATION. CONDITIONS D'IRRADIATION FIUX Φ PENDANT 45 mn. CUIVRE BRUT.

a) 400°C

b) 450°C

c) 500°C

($G = 30000$)

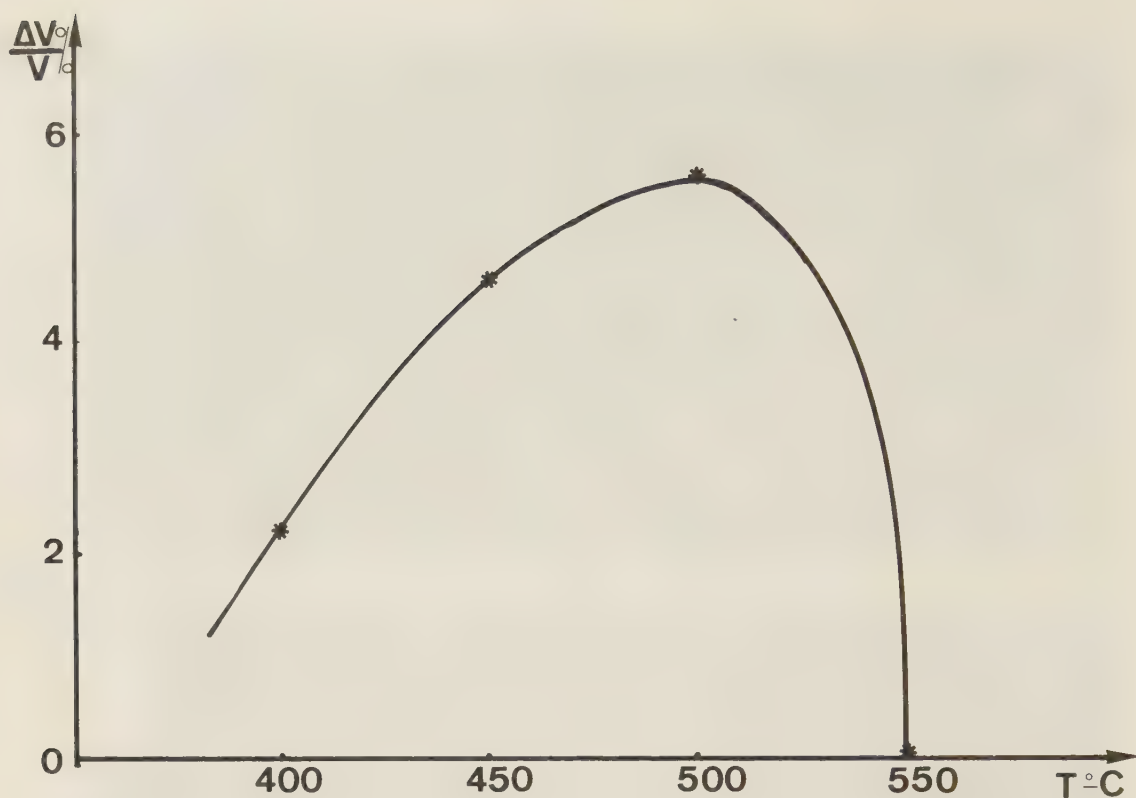


FIGURE 29 b: VARIATION DU GONFLEMENT EN FONCTION DE LA TEMPERATURE DANS LE CUIVRE BRUT IRRADIE AUX ELECTRONS. CONDITIONS D'IRRADIATION : FLUX Φ' PENDANT 45 MN

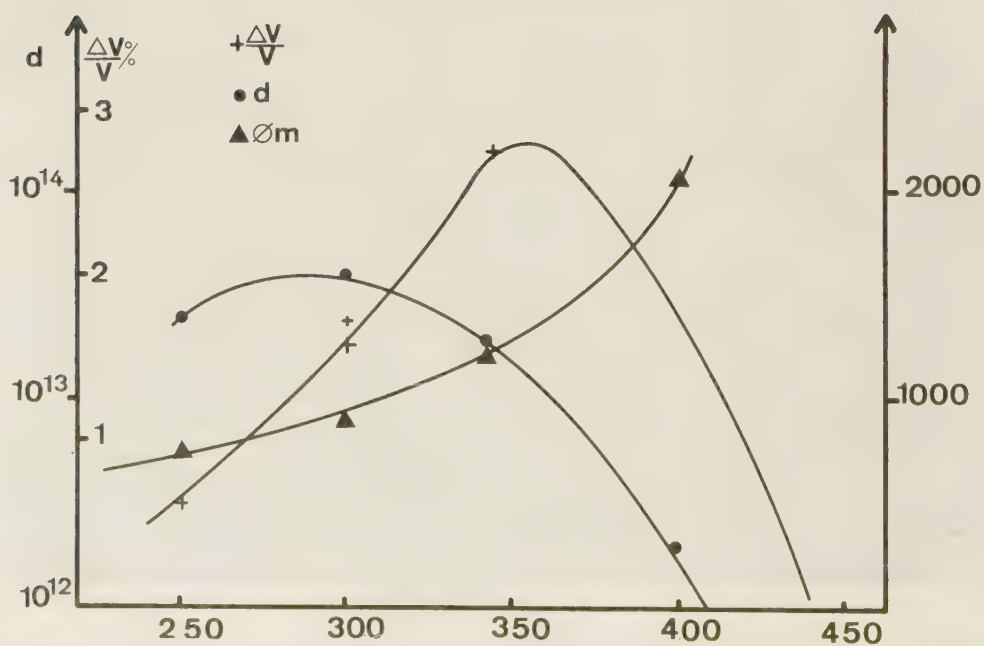


FIGURE 30 : VARIATION DU GONFLEMENT, DE LA DENSITE ET DE LA TAILLE MOYENNE DES CAVITES EN FONCTION DE LA TEMPERATURE. CUIVRE DEGAZE IRRADIE 3 heures AU FLUX Φ' .



a)



b)

FIGURE 31 : EVOLUTION DE LA MICROSTRUCTURE EN FONCTION DE LA TEMPERATURE D'IRRADIATION . CUIVRE DEGAZE IRRADIE 3 heures AU FLUX Φ' .

($G = 30000$)

a) 250°C

b) 400°C

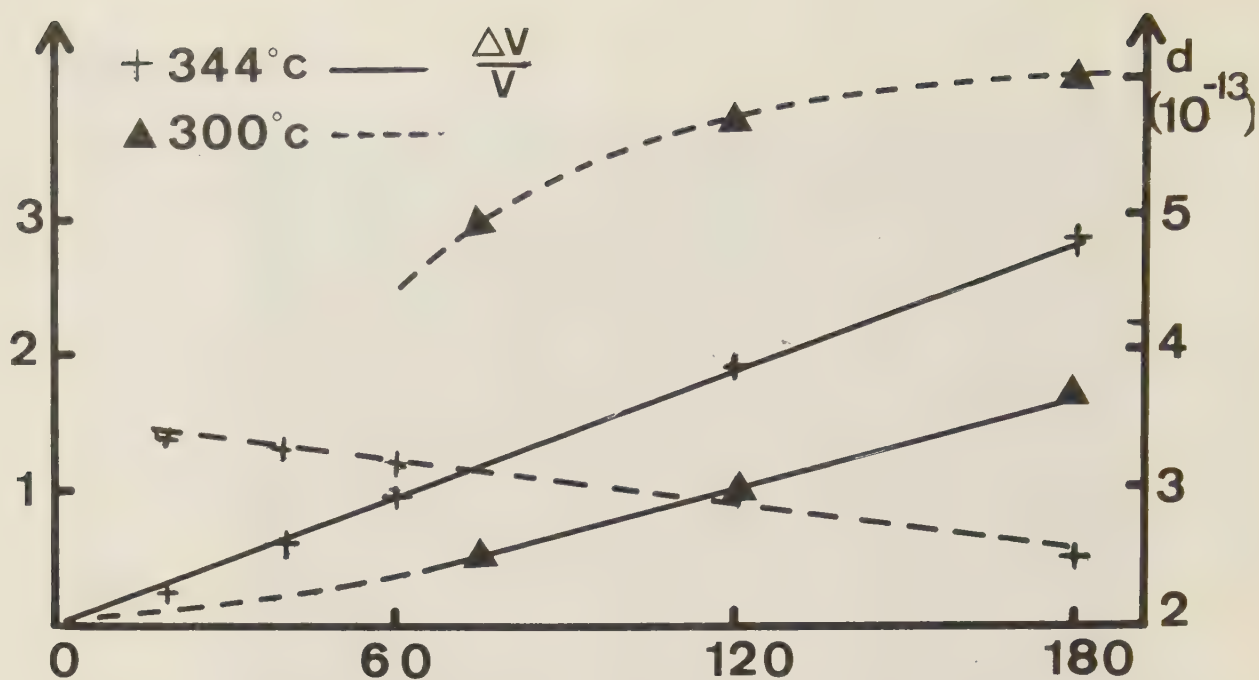


FIGURE 32 : VARIATION DU GONFLEMENT ET DE LA DENSITE DES CAVITES EN FONCTION DE LA DOSE. IRRADIATION AUX ELECTRONS CUIVRE DEGAZE

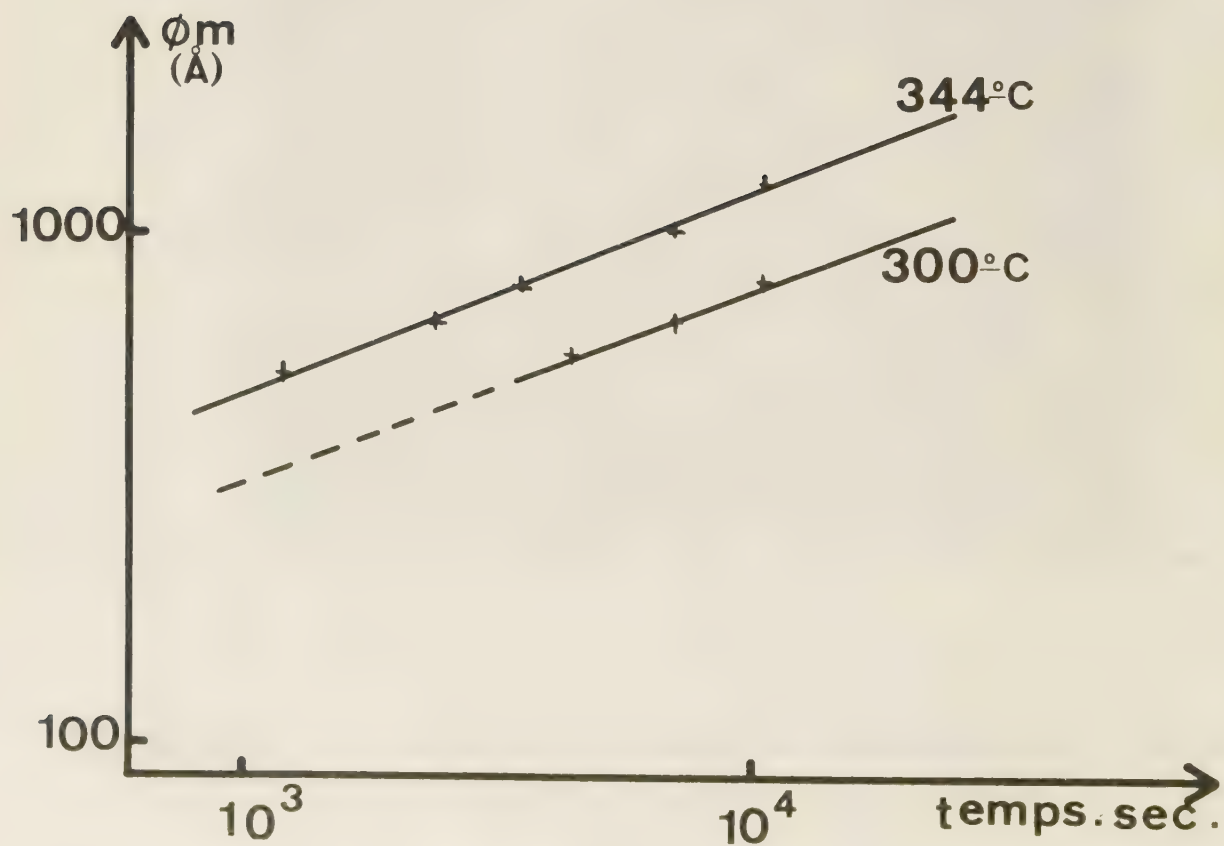


FIGURE 33 : VARIATION DE LA TAILLE MOYENNE DES CAVITES EN FONCTION DE LA DOSE. IRRADIATION AUX ELECTRONS. CUIVRE DEGAZE.



a)



b)



c)



d)

FIGURE 34 : EVOLUTION DE LA MICROSTRUCTURE EN FONCTION DE LA DOSE DANS LE CUIVRE DEGAZE IRRADIE A 344°C.
FLUX Φ'

a) 40 mn

b) 1 heure

c) 2 heures

d) 3 heures



a)



b)



c)

FIGURE 35 : EVOLUTION DE LA MICROSTRUCTURE EN FONCTION DE LA DOSE DANS LE CUIVRE DEGAZE IRRADIE A 300°C.

a) 1h15 mn

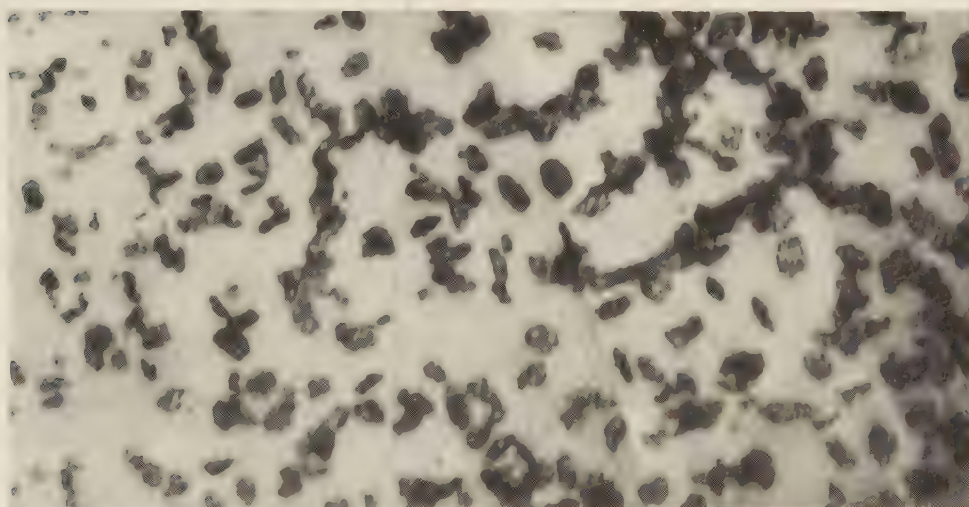
b) 2 heures

c) 3 heures

($G = 30000$)



FIGURE 36 : CUIVRE DEGAZE AYANT SUBI 10 mn D'IRRADIATION AU FLUX Φ' SUIVIE
DE 3h20mn AU FLUX $\Phi'/10$. TEMPERATURE D'IRRADIATION 344°C.
($G = 30000$)



a)



b)

FIGURE 37 : ASPECT DES LAMES APRES UNE IRRADIATION DE 30 mn A $s < 0$
a) Flux Φ' b) Flux $\Phi'/10$
($G = 30000$)

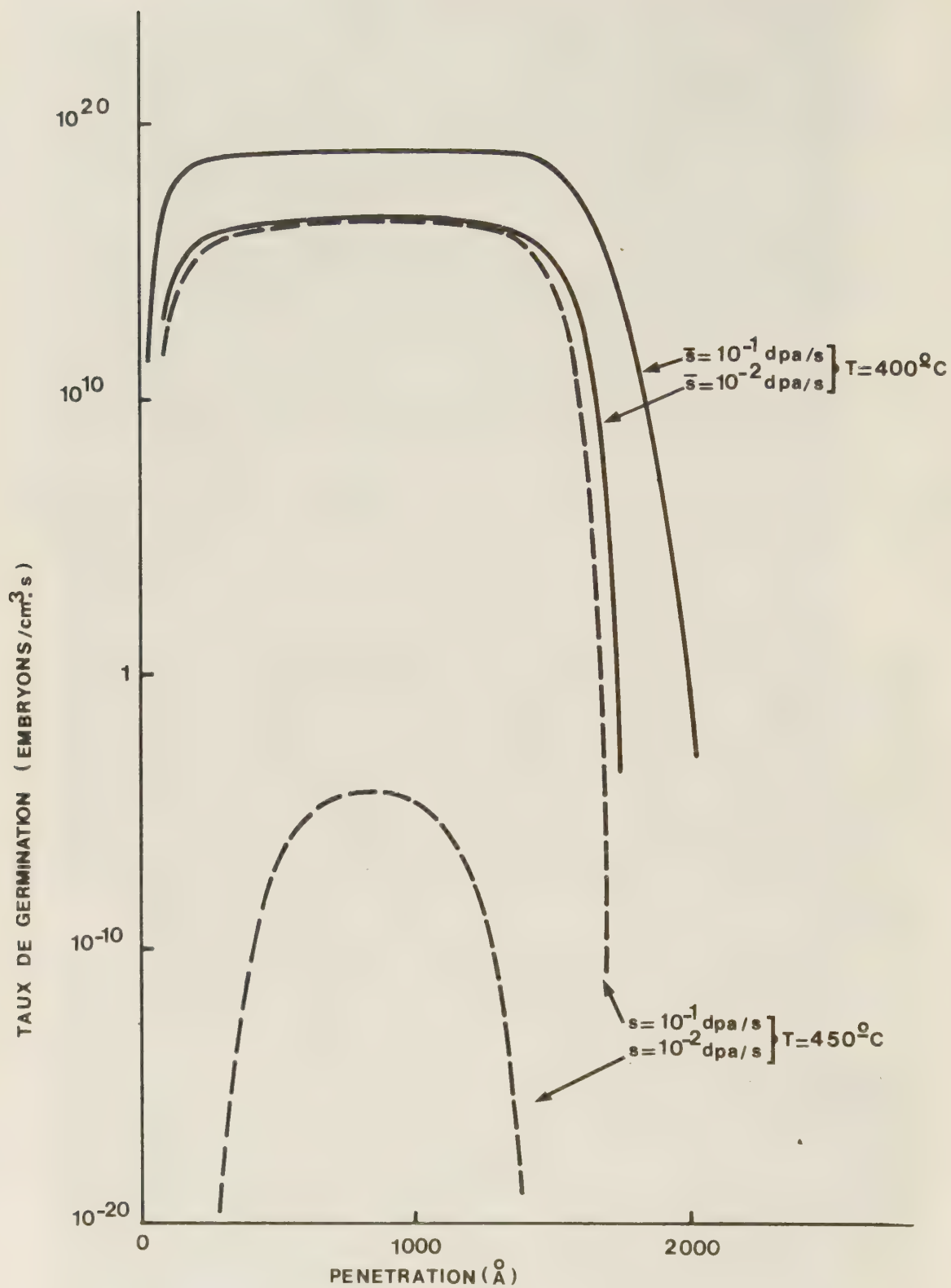


FIGURE 38 : VALEURS THEORIQUES DU TAUX DE GERMINATION EN FONCTION DE LA PROFONDEUR DE PENETRATION, DANS UNE LAME D'EPAISSEUR 3000 Å IRRADIÉE AUX IONS Cu⁺ DE 500 Kev . $\rho_d = 10^{11}$ lignes/cm². $\gamma = 400 \text{ erg/cm}^2$.

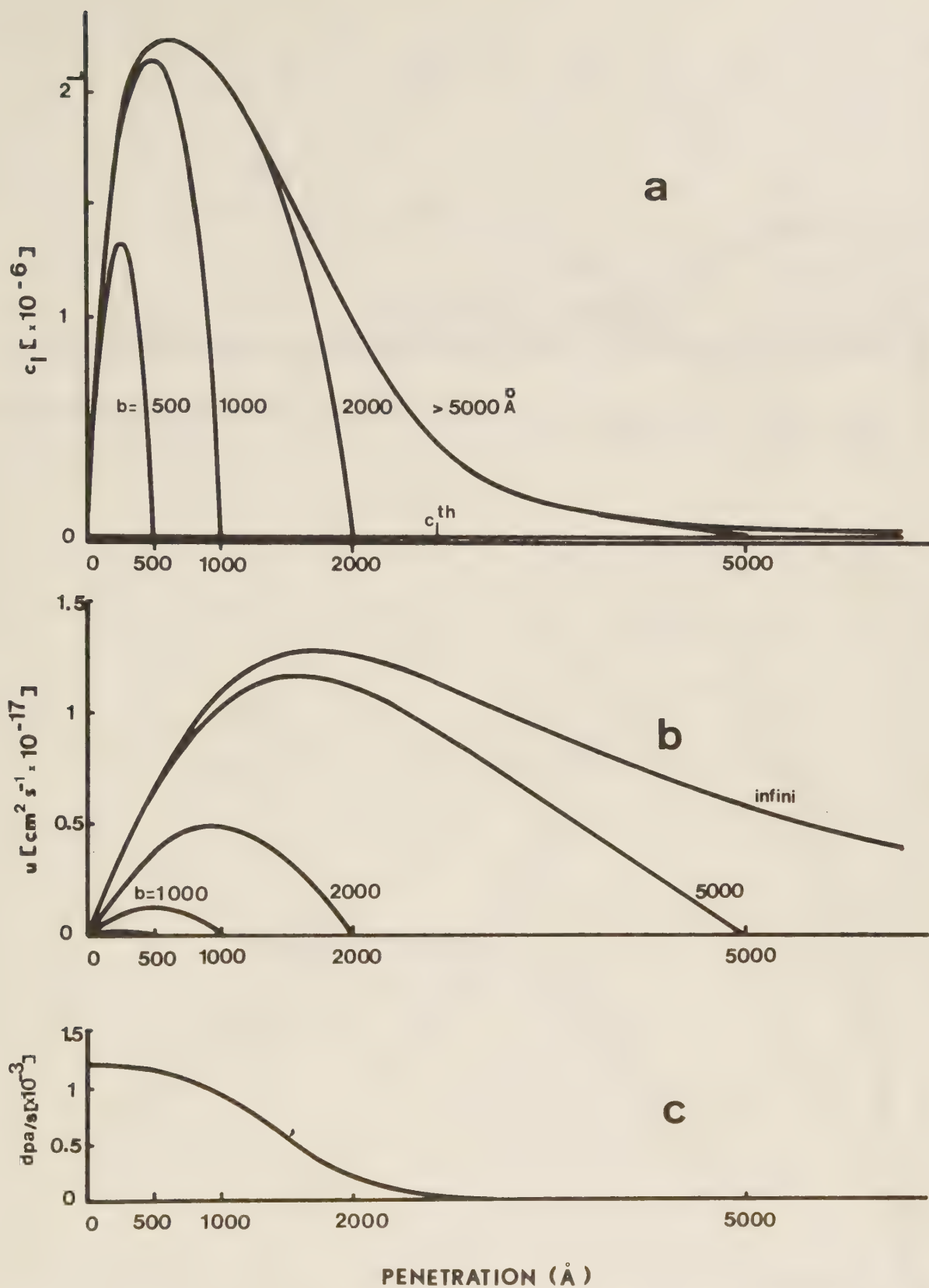


FIGURE 39 : VALEURS THEORIQUES DES CONCENTRATIONS LACUNAIRES C_l , DU PARAMETRE DE CROISSANCE u ET DE LA SURFACE DE DEFAUTS POUR UNE LAME DE CUIVRE D'EPAISSEUR VARIABLE. $T = 400^\circ\text{C}$.

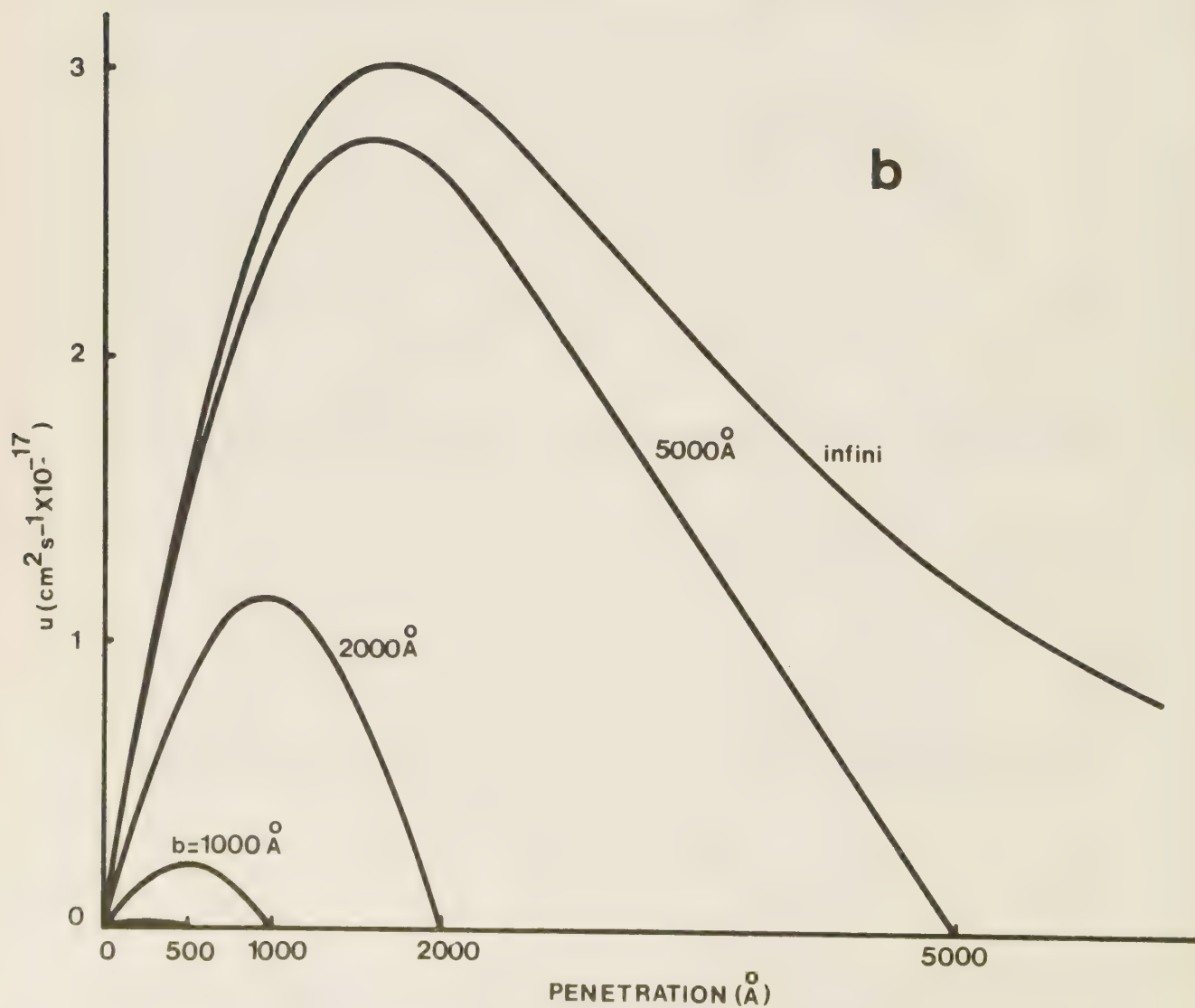
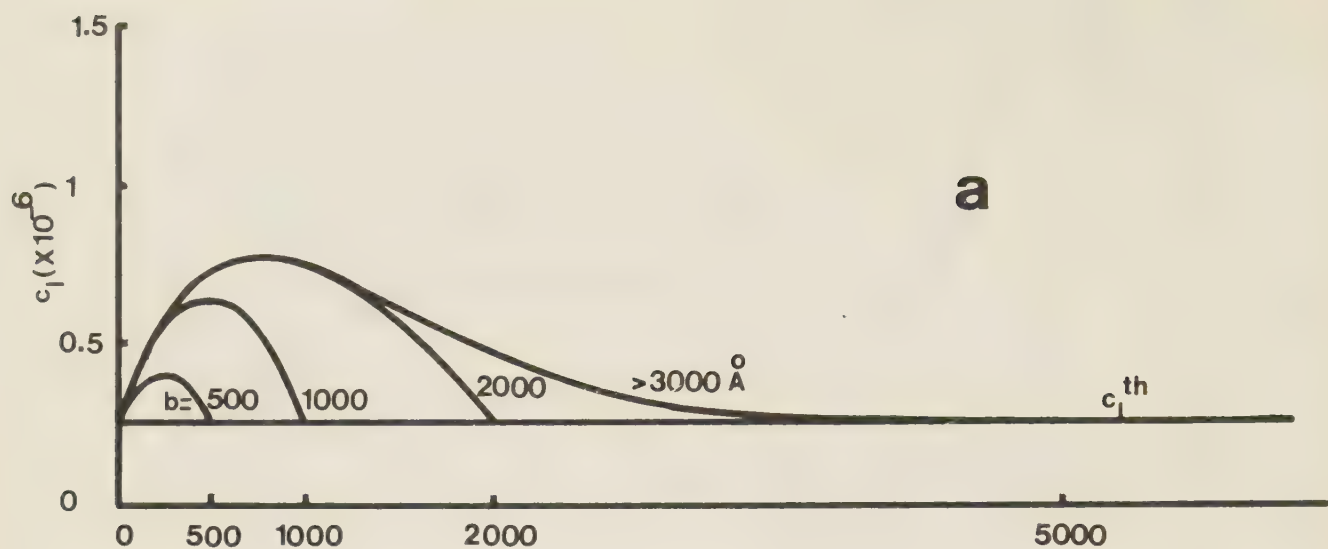


FIGURE 40 : Idem Figure 36 pour $T = 500^\circ\text{C}$.

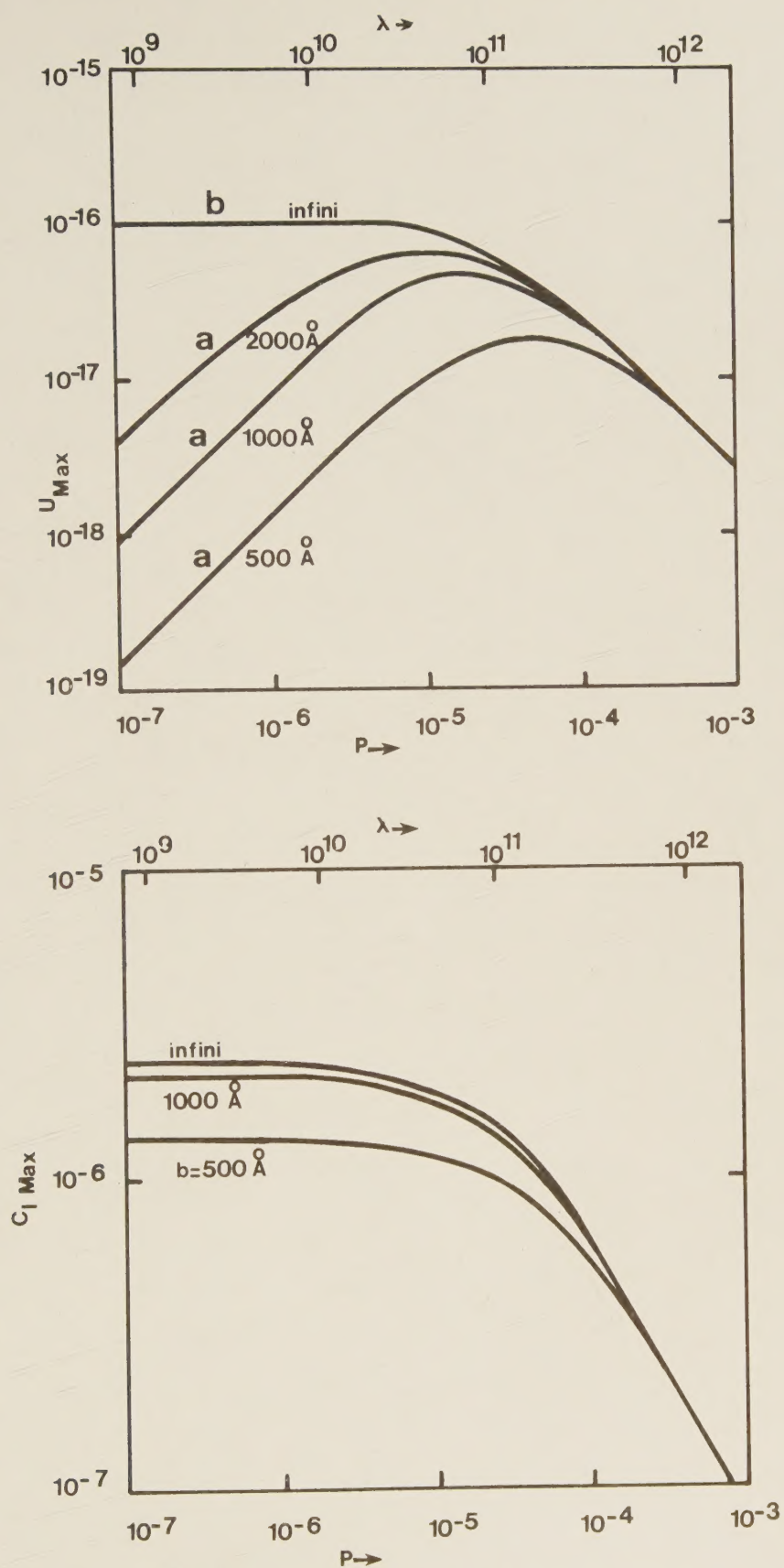


FIGURE 41 : VALEURS THEORIQUES DU PARAMETRE DE CROISSANCE ET DE LA CONCENTRATION LACUNAIRE EN FONCTION DE LA PROBABILITE DE CAPTURE P ET DE LA DENSITE DE LIGNES DE DISLOCATION λ .

